

(19)



Europäisches Patentamt
European Patent Office
Office européen des brevets



(11) Veröffentlichungsnummer: **0 463 444 A1**

(12)

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(21) Anmeldenummer: 91109440.7

(22) Anmeldetag: 08.06.91

(51) Int. Cl.⁵: **C07D 498/04**, C07D 513/04,
A01N 43/76, A01N 43/78,
A01N 43/80, //(C07D498/04,
261:00,207:00),(C07D498/04,
263:00,207:00),(C07D513/04,
275:00,207:00),(C07D513/04,
277:00,207:00)

(30) Priorität: 23.06.90 DE 4020072
16.07.90 DE 4022566

(43) Veröffentlichungstag der Anmeldung:
02.01.92 Patentblatt 92/01

(64) Benannte Vertragsstaaten:
AT BE CH DE ES FR GB IT LI NL

(71) Anmelder: BASF Aktiengesellschaft
Carl-Bosch-Strasse 38
W-6700 Ludwigshafen(DE)

(72) Erfinder: Maywald, Volker, Dr.
Berner Weg 24
W-6700 Ludwigshafen(DE)
Erfinder: Ditrich, Klaus, Dr.
Paray-le-Monial-Strasse 12
W-6702 Bad Duerkheim(DE)

Erfinder: Kuekenhoechner, Thomas, Dr.
Seldelstrasse 2

W-6710 Frankenthal(DE)

Erfinder: Hamprecht, Gerhard, Dr.

Rote-Turm-Strasse 28

W-6940 Weinheim(DE)

Erfinder: Freund, Wolfgang, Dr.

Johann-Gottlieb-Fichte-Strasse 71

W-6730 Neustadt(DE)

Erfinder: Westphalen, Karl-Otto, Dr.

Mausbergweg 58

W-6720 Speyer(DE)

Erfinder: Gerber, Matthias, Dr.

Ritterstrasse 3

W-6704 Mutterstadt(DE)

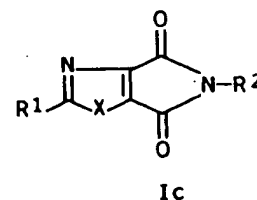
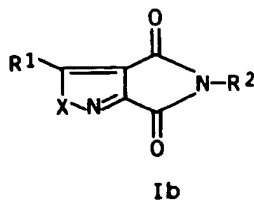
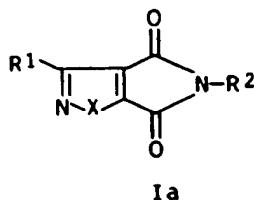
Erfinder: Walter, Helmut, Dr.

Gruenstadter Strasse 82

W-6719 Obrigheim 3(DE)

(64) Dicarbonsäureimide.

(57) Dicarbonsäureimide der Formeln Ia, Ib und Ic



in der die Substituenten folgende Bedeutung haben:

X Sauerstoff oder Schwefel;

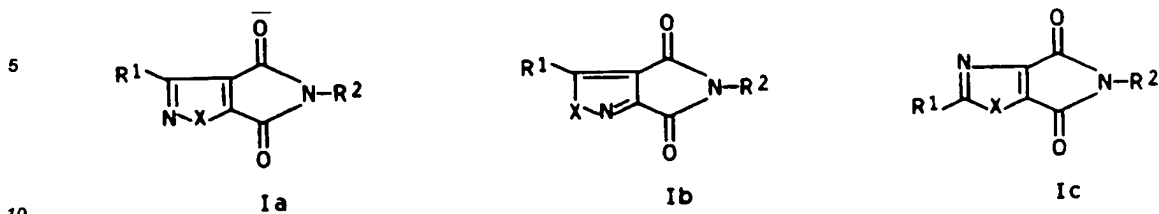
R¹ Wasserstoff; Halogen; Cyano; Alkyl; Cycloalkyl; Alkenyl; Alkynyl; Alkoxy; Alkenyloxy; Alkinyloxy; Alkylthio; Halogenalkoxy; Halogenalkylthio; Alkylsulfonyl; Halogenalkylsulfonyl; Phenyl; Phenylalkyl; Phenoxy oder Phenylthio, ein 5- bis 6-gliedriger gesättigter oder aromatischer heterocyclischer Rest, enthaltend ein oder zwei

Heteroatome, ausgewählt aus der Gruppe Sauerstoff, Schwefel und Stickstoff; wobei die genannten organischen Reste weiter substituiert sein können;

R² Wasserstoff; Hydroxyl; Alkoxy; Alkyl; Cycloalkyl; Alkenyl; Alkynyl; Di-C₁-C₄-alkylamino; ein 5- bis 6-gliedriger heterocyclischer gesättigter oder aromatischer Rest mit einem oder zwei Heteroatomen, ausgewählt aus der Gruppe Sauerstoff, Schwefel oder Stickstoff; Phenyl; Naphthyl; wobei die genannten organischen Reste weiter substituiert sein können

sowie pflanzenverträgliche Salze der Dicarbonsäureimide I, ausgenommen 3-Methylisoxazol-4,5-dicarboximid und Thiazol-4,5-dicarbonsäureimide, in denen R² für Phenyl steht, wenn R¹ Methyl oder 2-Thiazolyl bedeutet und diese Verbindungen enthaltende herbizide Mittel.

Die vorliegende Erfindung betrifft Dicarbonsäureimide der Formeln Ia, Ib oder Ic



in der die Substituenten folgende Bedeutung haben:

X

Sauerstoff oder Schwefel;

15 R¹

Wasserstoff; Halogen; Cyano;

C₁-C₆-Alkyl, welches ein bis fünf Halogenatome und/oder einen oder zwei der folgenden Reste tragen kann: C₃-C₆-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl oder Cyano;

20 C₃-C₈-Cycloalkyl, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: C₁-C₄-Alkyl oder Halogen;

C₂-C₆-Alkenyl, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: Halogen, C₁-C₃-Alkoxy und/oder ein Phenyl, das seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro;

25 C₂-C₆-Alkynyl, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: Halogen oder C₁-C₃-Alkoxy und/oder ein Phenyl, das seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro;

C₁-C₄-Alkoxy; C₂-C₆-Alkenyloxy; C₂-C₆-Alkynyloxy; C₁-C₄-Alkylthio; C₁-C₄-Halogenalkoxy; C₁-C₄-Halogenalkylthio; C₁-C₄-Alkylsulfonyl; C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl;

30 Phenoxy oder Phenylthio, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro;

ein 5- bis 6-gliedriger gesättigter oder aromatischer heterocyclischer Rest, enthaltend ein oder zwei Heteroatome, ausgewählt aus der Gruppe Sauerstoff, Schwefel und Stickstoff, wobei der Ring ein oder zwei

35 der folgenden Reste tragen kann: C₁-C₃-Alkyl, Halogen, C₁-C₃-Alkoxy oder C₁-C₃-Alkoxycarbonyl;

ein kondensierter aromatischer Rest, ausgewählt aus der Gruppe Benzofuran-2-yl, Benzofuran-3-yl, Isobenzofuran-2-yl, Benzothiophen-2-yl, Benzothiophen-3-yl, Isobenzothiophen-2-yl, Indol-2-yl, Indol-3-yl, 1,2-Benzisoxazol-3-yl, Benzoxazol-2-yl, 1,2-Benzisothiazol-3-yl, Benzothiazol-2-yl, Indazol-3-yl, (1H)-Benzimidazol-2-yl, Chinolin-3-yl, Chinolin-5-yl, Chinolin-6-yl, Chinolin-8-yl, Isochinolin-1-yl und Isochinolin-5-yl, wobei dieser Rest ein oder zwei der folgenden Reste tragen kann: Alkyl wie oben genannt, insbesondere Methyl; Halogen wie oben genannt, insbesondere Fluor und Chlor; Alkoxy wie oben genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy oder Alkoxycarbonyl wie Methoxycarbonyl und Ethoxycarbonyl, insbesondere Methoxycarbonyl;

Phenyl oder Phenyl-C₁-C₄-alkyl, wobei der Phenylkern jeweils unsubstituiert oder durch ein bis drei der folgenden Gruppen substituiert ist: C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₆-Halogenalkyl, C₁-C₆-Alkoxy, C₁-C₆-Halogenalkoxy, C₁-C₆-Alkylthio, C₁-C₆-Halogenalkylthio, Halogen, Nitro und Cyano;

R²

Wasserstoff; Hydroxyl; C₁-C₄-Alkoxy;

50 C₁-C₆-Alkyl, das eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: Cyano, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkoxy, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Di-C₁-C₄-alkylamino, Halogen, C₃-C₈-Cycloalkyl oder Phenyl, wobei der Phenylring seinerseits ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: Halogen, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio oder C₁-C₄-Halogenalkylthio;

C₃-C₈-Cycloalkyl, das eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₆-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, Halogen, Nitro oder Cyano;

55 C₃-C₆-Alkenyl, das ein- bis dreimal durch Halogen und/oder einmal durch Phenyl substituiert sein kann, wobei der Phenylrest seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano

oder Nitro;

C₃-C₆-Alkynyl, das ein- bis dreimal durch Halogen und/oder einmal durch Phenyl substituiert sein kann, wobei der Phenylrest seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano

5 oder Nitro;

Di-C₁-C₄-alkylamino;

ein 5- bis 6-gliedriger heterocyclischer gesättigter oder aromatischer Rest mit einem oder zwei Heteroatomen, ausgewählt aus der Gruppe Sauerstoff, Schwefel oder Stickstoff, der ein- bis dreimal durch C₁-C₄-Alkyl oder Halogen substituiert sein kann;

10 ein kondensierter aromatischer Rest, ausgewählt aus der Gruppe Benzofuran-2-yl, Benzofuran-3-yl, Isobenzofuran-2-yl, Benzothiophen-2-yl, Benzothiophen-3-yl, Isobenzothiophen-2-yl, Indol-2-yl, Indol-3-yl, 1,2-Benzisoxal-3-yl, Benzoxazol-2-yl, 1,2-Benzisothiazol-3-yl, Benzothiazol-2-yl, Indazol-3-yl, (1H)-Benzimidazol-2-yl, Chinolin-3-yl, Chinolin-5-yl, Chinolin-6-yl, Chinolin-8-yl, Isochinolin-1-yl und Isochinolin-5-yl, wobei dieser Rest ein- bis dreimal durch C₁-C₄-Alkyl oder Halogen substituiert sein kann;

15 Phenyl, das eine bis vier der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Nitro, Cyano, Formyl, Phenyl, C₁-C₄-Alkanoyl, C₁-C₄-Halogenalkanoyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl;

Naphthyl, das ein- bis dreimal durch C₁-C₄-Alkyl oder Halogen substituiert sein kann;

20 sowie pflanzenverträgliche Salze der Dicarbonsäureimide, ausgenommen 3-Methylisoxazol-4,5-dicarboximid und Thiazol-4,5-dicarbonsäureimide, in denen R² für Phenyl steht, wenn R¹ Methyl oder 2-Thiazolyl bedeutet.

Weiterhin betrifft die Erfindung Verfahren zur Herstellung dieser Verbindungen sowie herbizide Mittel, welche mindestens eine Verbindung Ia, Ib oder Ic enthalten, in der die Substituenten die vorstehend gegebene Bedeutung haben, einschließlich 3-Methylisoxazol-4,5-dicarboximid und Thiazol-4,5-dicarbonsäureimide, in denen R² für Phenyl steht, wenn R¹ Methyl oder 2-Thiazolyl bedeutet.

25 Aus Arch. Pharm. 320, 1281-83 (1987) sind Isoxazoldicarbonsäureimide mit einer Ethoxycarbonylmethylsubstitution in 3-Stellung bekannt. Ferner ist in J. Chem. Soc. Perkin Trans 1, 2391-4 (1982) das 3-Methylisoxazol-4,5-dicarbonsäureimid beschrieben. Synthesis 1988, 449-52 lehrt 5-Amino-substituierte Isothiazoldicarbonsäureimide als Zwischenprodukte zur Herstellung von Farbstoffen.

30 Speziell substituierte Thiazol-4,5-dicarbonsäureimide sind bekannt aus J. Het. Chem. 26 (1989) 885; Synthesis 1988, 449; J. Het. Chem. 25 (1988) 901; J. Chem. Soc. Perkin Trans. 1, 1981, 2692). Dem zitierten Stand der Technik sind keine Hinweise auf herbizide Eigenschaften der Dicarbonsäureimide zu entnehmen.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung war es, neue herbizid wirksame Verbindungen zur Verfügung zu stellen.

35 Demgemäß wurde gefunden, daß die eingangs definierten Dicarbonsäureimide Ia, Ib und Ic herbizide Eigenschaften besitzen.

Die erfindungsgemäßen Dicarbonsäureimide I sind auf verschiedenen Wegen herstellbar; man erhält sie beispielsweise nach den folgenden Verfahren:

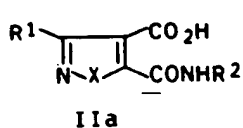
40

Weg A

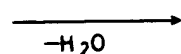
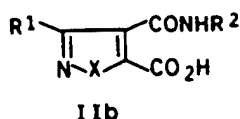
Durch Wasserentzug mit wasserabspaltenden Mitteln, beispielsweise Acetanhydrid, anorganischen Säurehalogeniden wie Thionylchlorid, Phosphor(III)- oder Phosphor(V)-halogeniden wie Phosphor-trichlorid oder Phosphor-pentachlorid, Phosgen, p-Toluolsulfonsäurechlorid oder Propan-phosphonsäureanhydrid, werden die Verbindungen IIa bis IIf in die Dicarbonsäureimide der Formel I umgewandelt.

50

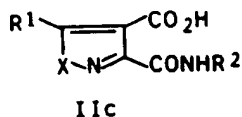
55



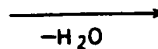
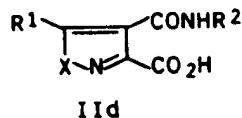
oder



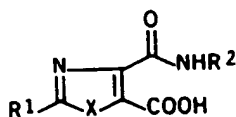
Ia



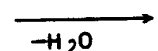
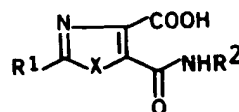
oder



Ib



oder



Ic

Die Reaktion wird zweckmäßigerweise so durchgeführt, daß man die Dicarbonsäuremonoamide in einem inerten organischen Lösungsmittel vorlegt und etwa molare Mengen eines wasserabspaltenden Mittels, gegebenenfalls ebenfalls gelöst in einem inerten Lösungsmittel, zutropft. Das Gemisch kann wie üblich aufgearbeitet werden, beispielsweise durch Hydrolyse mit Wasser und Absaugen oder Extraktion des Produktes mit einem organischen Lösungsmittel und Einengen des organischen Lösungsmittels.

Als Lösungsmittel für diese Umsetzungen verwendet man zweckmäßigerweise Halogenkohlenwasserstoffe, z. B. Tetrachlorethan, Methylchlorid, Chloroform, Dichlorethan, Chlorbenzol und 1, 2-Dichlorbenzol; Ether, z. B. Diethylether, Methyl-tert.-butylether, Dimethoxyethan, Diethylenglykoldiethylether, Tetrahydrofuran und Dioxan; dipolare aprotische Lösungsmittel, z. B. Acetonitril, Dimethylformamid, Dimethylacetamid, Dimethylsulfoxid, N-Methylpyrrolidon, 1,3-Dimethyltetra-hydro-2(1H)-pyrimidinon und 1,3-Dimethylimidazolin-2-on; Aromaten, z. B. Benzol, Toluol, Xylol, Pyridin und Chinolin; Ketone, z. B. Aceton, Methylethylketon oder entsprechende Gemische.

Die Dehydratisierung kann bei Temperaturen von -10°C bis zur Rückflußtemperatur des jeweiligen Lösungsmittels, vorzugsweise bei 0 bis 150°C , durchgeführt werden.

Die molaren Verhältnisse, in denen die benötigten Ausgangsverbindungen miteinander umgesetzt werden, betragen im allgemeinen 0,9:1 bis 5:1 für das Verhältnis von wasserabspaltendem Mittel zu Säureamid.

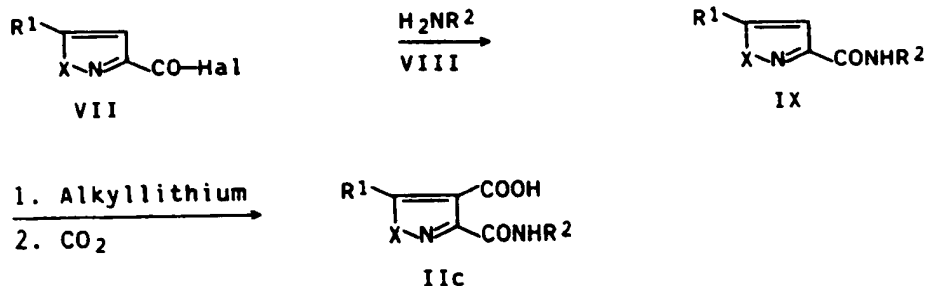
Die Konzentration der Edukte im Lösungsmittel(gemisch) liegt im allgemeinen bei 0,1 bis 5 mol/l, bevorzugt 0,2 bis 2 mol/l.

Die Herstellung der Dicarbonsäuremonoamide IIa, die für dieses Verfahren als Ausgangsstoffe benötigt werden, ist in der DE-A-38 12 225 beschrieben.

Die Dicarbonsäuremonoamide IIc können wie in der DE-A 39 31 627 beschrieben erhalten werden. Ausgangsstoffe sind Isoxazol- und Isothiazol-3-carbonsäurehalogenide VII, die mit einem Amin VIII umgesetzt werden. Als Carbonsäurehalogenide VII sind die Chloride bevorzugt. Dabei geht man zweckmäßigerweise so vor, daß man das Carbonsäurehalogenid in einem inerten organischen Lösungsmittel wie Dichlormethan, oder einem Ether wie Diethylether oder Methyl-tert.butylether mit einem Amin VIII, ebenfalls gelöst in einem organischen Lösungsmittel, zur Reaktion bringt. Dabei setzt man das Amin VIII zweckmäßigerweise in 2- bis 5-fach molarer Menge, vorzugsweise 2- bis 3-fach molarer Menge, ein, um den entstehenden Halogenwasserstoff zu binden. Man kann auch in Gegenwart einer Hilfsbase wie z.B. einem tertiären Amin (Triethylamin) arbeiten. In diesem Fall genügen 1 bis 1,5 Moläquivalente Amin VIII. Die Reaktionstemperatur kann zwischen 0 und 50°C , vorzugsweise zwischen 0 und 20°C betragen. Die Reaktion ist im allgemeinen nach 1 bis 12 Stunden beendet. Das Gemisch kann wie üblich aufgearbeitet werden, beispielsweise durch Hydrolyse mit Wasser und Extraktion des Produktes IX mit einem organischen Lösungsmittel und Einengen des organischen Lösungsmittels.

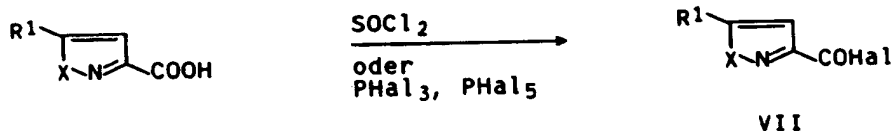
Aus den Isoxazol- bzw. Isothiazolamiden IX erhält man die 3-Aminocarbonyl-isoxazol-4-carbonsäuren bzw. 3-Aminocarbonyl-isothiazol-4-carbonsäuren der Formel IIc, durch Umsetzung mit Alkylolithium wie n-Butyllithium, sec.-Butyllithium und Methylolithium, vorzugsweise unter Zugabe eines unter den Reaktionsbedingungen inerten Lösungsmittels, wie Diethylether oder Tetrahydrofuran. In der Regel wird diese Umsetzung unter einer Inertgasatmosphäre, z.B. Stickstoffatmosphäre, bei Temperaturen zwischen -70 und -80°C

vorgenommen. Die Alkylolithiumverbindung wird bei diesem Verfahren im allgemeinen in 2- 3-fach molarer Menge bezogen auf eingesetztes Amid der Formel IX verwendet. Nach vollständiger Umsetzung wird das Gemisch mit Kohlendioxid behandelt, vorzugsweise in einem inerten Lösungsmittel wie Diethylether oder z.B. Tetrahydrofuran, wobei man die gewünschten Produkte der Formel IIc erhält.



Hal = Halogen wie Cl, Br

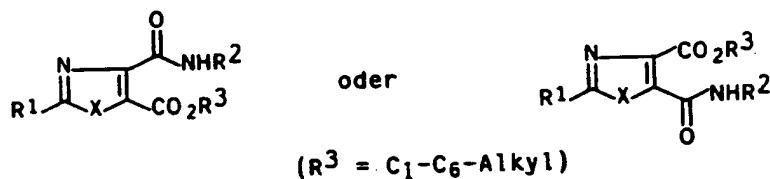
Die für dieses Verfahren als Ausgangsmaterial benötigten Isoxazol- und Isothiazol-3-carbonsäurehalogenide VII sind literaturbekannt oder können aus den entsprechenden Carbonsäuren auf übliche Art und Weise hergestellt werden.



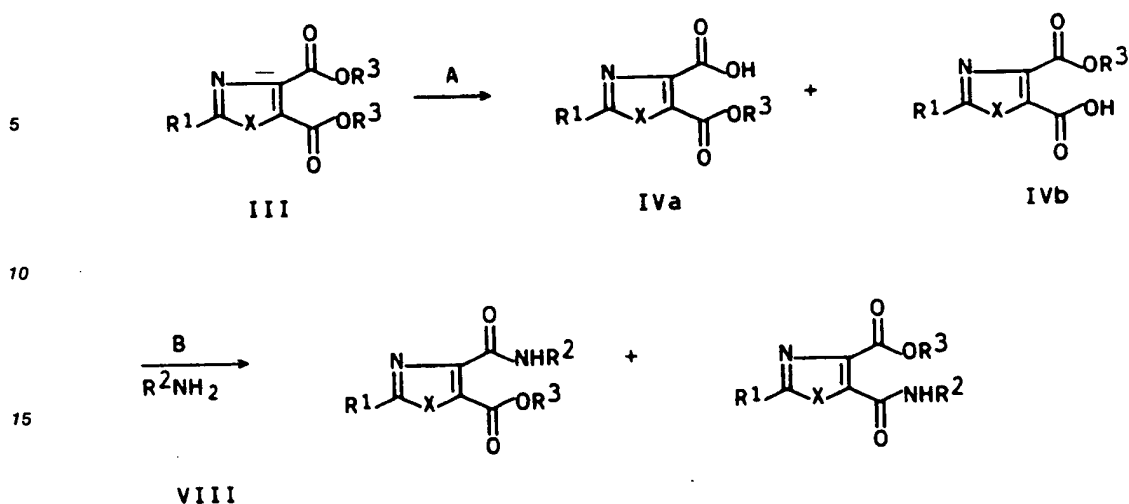
Die für dieses Verfahren benötigten Carbonsäuren sind literaturbekannt (Beilstein, Hauptwerk sowie 1.- 5. Ergänzungswerk, Band 27; R.W. Wiley, The Chemistry of Heterocyclic Compounds, Five- and Six-Membered Compounds with Nitrogen and Oxygen, Interscience Publishers, New York, London (1962)) oder können nach allgemein literaturbekannten Methoden, z.B. durch Oxidation aus den entsprechenden Alkoholen oder Aldehyden oder durch Hydrolyse aus den entsprechenden Nitrilen hergestellt werden.

Die als Ausgangsmaterialien verwendeten Dicarbonsäuremonoamide IIe und II f können nach verschiedenen Verfahren erhalten werden:

a) durch Verseifung der entsprechenden Alkylester, z.B. Methyl- oder Ethylester gemäß den unter Reaktionsschritt A angegebenen Bedingungen.



Man erhält diese Alkylester dadurch, daß man einen Diester der Formel III in an sich bekannter Weise mit einem Äquivalent einer wäßrigen Base zum Monoester IVa bzw. IVb hydrolysiert und IVa und IVb danach getrennt oder im Gemisch zunächst in das Halogenid oder eine andere aktivierte Form der Carbonsäure überführt und diese Derivate anschließend mit einem Amin VIII amidiert.



20 Die einzelnen Reaktionsschritte A und B dieser Synthesesequenz können wie folgt durchgeführt werden:

Reaktionsschritt A:

25 Die partielle Verseifung des Diesters III zum Monoester IVa und IVb wird üblicherweise bei Temperaturen von -20 bis 60°C , vorzugsweise -10 bis 30°C , in einem inerten, mit Wasser mischbaren organischen Lösungsmittel in Gegenwart von 1,0 bis 1,2 mol-Äquivalenten einer Base durchgeführt.

Als Basen eignen sich insbesondere Hydroxyde von Alkalimetall-Kationen wie Natrium- oder Kaliumhydroxid. Die Base wird im allgemeinen als 5 bis 20 %ige wäßrige Lösung zugesetzt.

30 Bevorzugte Lösungsmittel für diese Umsetzung sind beispielsweise Dioxan oder der der Esterkomponente in der Formel III entsprechende Alkohol.

Zur Aufarbeitung wird das Reaktionsgemisch üblicherweise angesäuert, wobei sich das gewünschte Produkt als Feststoff oder als Öl abscheidet. Die Isolierung erfolgt in üblicher Weise durch Filtration bzw. Extraktion.

35 Das Gemisch der beiden Isomeren IVa und IVb kann durch fraktionierte Kristallisation oder auf chromatographischem Wege getrennt werden, oder es kann ohne Trennung weiter umgesetzt werden.

Reaktionsschritt B:

40 Die Monoester IVa und IVb werden zunächst in an sich bekannter Weise in das Halogenid oder eine andere aktivierte Form der Carbonsäurefunktion überführt und diese Derivate anschließend mit einem Amin VIII amidiert.

Aktivierte Formen der Carbonsäure sind neben Halogeniden wie insbesondere den Chloriden und den Bromiden beispielsweise auch Imidazolide. Im allgemeinen werden die Halogenide bevorzugt.

45 Man erhält sie durch Umsetzung der Carbonsäuren IVa und IVb mit einem Halogenierungsmittel wie Thionylchlorid, Thionylbromid, Phosphorylchlorid bzw. -bromid, Phosphortri- und pentachlorid bzw. -bromid, Phosgen sowie elementarem Chlor und Brom.

Das Halogenierungsmittel wird in 1 bis 5, vorzugsweise 1 bis 2 mol-Äquivalenten, eingesetzt.

50 Die Umsetzung verläuft bei Temperaturen von 0°C bis zum Siedepunkt des Halogenierungsmittels bzw. sofern man in Gegenwart eines inerten organischen Lösungsmittels arbeitet, auch dessen Siedepunkt, vorzugsweise 20 bis 120°C .

Als Lösungsmittel eignen sich beispielsweise Kohlenwasserstoffe und Halogenkohlenwasserstoffe wie Tetrachlorethan, Methylenchlorid, Chloroform, Dichlorethan, Chlorbenzol, 1,2-Dichlorbenzol, Benzol, Toluol und Xylol.

55 Üblicherweise werden die aktivierten Carbonsäurederivate isoliert, beispielsweise durch Abdestillieren des Halogenierungsmittels und sofern vorhanden des Lösungsmittels und erst anschließend mit den Aminen umgesetzt.

In diesem Fall wird die Amidierung bei Temperaturen -20 bis 100°C , vorzugsweise -10 bis 20°C in

einem inerten aprotisch polaren organischen Lösungsmittel durchgeführt.

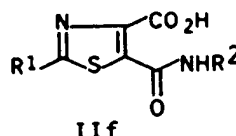
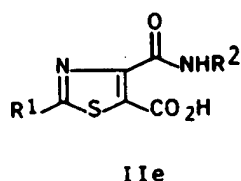
Für diese Umsetzung eignen sich insbesondere Halogenkohlenwasserstoffe wie Dichlormethan und Ether wie Diethylether und tert.-Butylmethylether als Lösungsmittel.

Da bei der Amidierung von Säurehalogeniden Halogenwasserstoff gebildet wird, empfiehlt es sich, das Amin VIII in 2 bis 5 mol-Äquivalenten Überschuß, vorzugsweise 2 bis 3 mol-Äquivalenten zuzusetzen. Sofern das Amin in etwa äquimolaren Mengen (1 bis 1,2 mol-Äquivalenten) eingesetzt wird, sollte zum Binden des Halogenwasserstoffs eine Base, insbesondere ein tertiäres Amin wie Triethylamin oder Pyridin zugegeben werden.

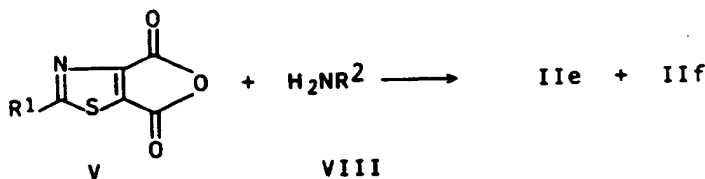
Sofern man von einem Gemisch der Monoester IVa und IVb ausgeht, erhält man bei der Umsetzung ein Gemisch aus den isomeren Carbonsäureamiden. Dieses Gemisch kann auf herkömmliche Weise, beispielsweise durch fraktionierte Kristallisation oder Chromatographie in die Einzelkomponenten aufgetrennt werden.

Die für diese Synthesesequenz benötigten Edukte III sind bekannt (Bull. Soc. Chim. Fr. 1974, 2079) oder nach bekannten Methoden (Bull. Soc. Chim. Fr. 1969, 1762; J. Chem. Soc., 1953, 93) zugänglich.

b) Verfahren zur Herstellung von Thiazolcarbonsäureimiden IIe und II f.



Man erhält diese Thiazolcarbonsäureamide IIe und II f besonders vorteilhaft, indem man ein Dicarbonsäureanhydrid der Formel V in an sich bekannter Weise mit einem Amin der Formel VIII zu den Isomeren IIe und II f umsetzt und anschließend das Gemisch in die Isomeren auftrennt.



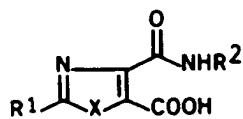
Die Umsetzung wird üblicherweise bei Temperaturen von -10 bis 150 °C, vorzugsweise 20 bis 120 °C in einem inerten aprotisch polaren organischen Lösungsmittel durchgeführt.

Insbesondere kommen als Lösungsmittel Halogenkohlenwasserstoffe, z. B. Tetrachlorethan, Methylchlorid, Chloroform, Dichlorethan, Chlorbenzol und 1,2-Dichlorbenzol; Ether z. B. Diethylether, Methyl-tert.-butylether, Dimethoxyethan, Diethylenglykoldimethylether, Tetrahydrofuran und Dioxan; dipolare aprotische Lösungsmittel, z. B. Acetonitril, Dimethylformamid, Dimethylacetamid, Dimethylsulfoxid, N-Methylpyrrolidon, 1,3-Dimethyltetrahydro-2(1H)-pyrimidinon und 1,3-Dimethylimidazolidin-2-on; Aromaten, z. B. Benzol, Toluol, Xylol, Pyridin und Chinolin; Ketone, z. B. Aceton, Methylethylketon oder entsprechende Gemische zur Anwendung.

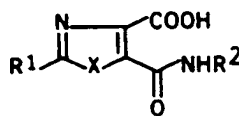
Das Amin VIII wird im allgemeinen in äquimolaren Mengen oder im Überschuß, vorzugsweise in Mengen von 1,0 bis 5,0 mol-Äquivalenten, bezogen auf V eingesetzt.

Die für dieses Verfahren benötigten Dicarbonsäureanhydride sind bekannt oder können nach bekannten Methoden hergestellt werden (Bull. Soc. Chim. Fr. 1969, 1762; CS-A-195 369; CS-A-195 370).

c) Verfahren zur Herstellung der Verbindungen IIe und II f in denen R¹ nicht Halogen oder Cyano bedeutet:

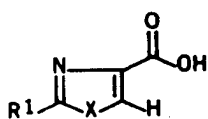


IIe

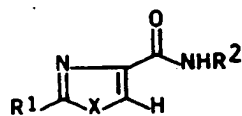
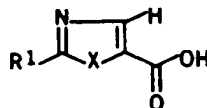
(R¹ ≠ Halogen, Cyano)

II f

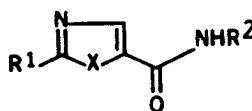
Man erhält diese isomeren Oxazol- bzw. Thiazolcarbonsäureamide, indem man eine entsprechende Carbonsäure gemäß den unter B geschilderten Bedingungen aktiviert und amidiert und die so erhaltenen Amide VIa und VIb anschließend in an sich bekannter Weise in Gegenwart eines Carboxylierungsreagens umsetzt.



oder



oder



B

Alkylolithium

CO₂

IIe bzw. II f

VIa

VIb

Der Reaktionsschritt A dieser Synthesesequenz wird im allgemeinen und im besonderen entsprechend den im Verfahren a) unter Punkt B beschriebenen Bedingungen durchgeführt.

Reaktionsschritt B:

Die Carboxylierung der Oxazol- bzw. Thiazolcarbonsäureamide VIa bzw. VIb erfolgt in der Regel bei Temperaturen von 0 bis -100 °C vorzugsweise -50 bis -80 °C in einem aprotisch polaren inerten organischen Lösungsmittel in Gegenwart einer Base unter Ausschluß von Feuchtigkeit.

Bevorzugtes Carboxylierungsreagens ist gasförmiges oder festes Kohlendioxid.

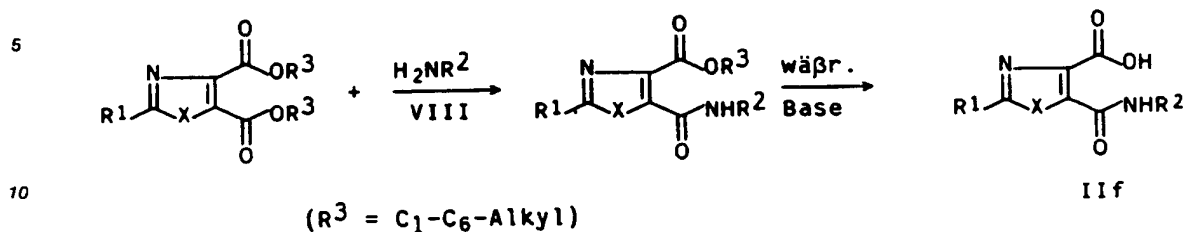
Geeignete Lösungsmittel sind insbesondere Ether, z. B. Diethylether, Methyl-tert.-butylether, Dimethoxyethan, Diethylen glykoldimethylether, Tetrahydrofuran und Dioxan.

Als Basen finden bevorzugt Organometallverbindungen wie Methyllithium, n-Butyllithium, s-Butyllithium, t-Butyllithium oder Phenyllithium Verwendung.

Die Umsetzung wird üblicherweise so durchgeführt, daß zunächst eine Lösung des Oxazol- bzw. Thiazolcarbonsäureamids VIa bzw. VIb mit bis zu 3 Mol-Äquivalenten der gelösten Base versetzt wird, wobei ein am Heterocyclus metallisiertes Derivat entsteht, welches bei der anschließenden Zugabe des elektrophilen Carboxylierungsreagenzes zum gewünschten Produkt IIe bzw. II f abreagiert.

Die für das vorstehende Verfahren benötigten Carbonsäuren sind literaturbekannt (Beilstein Band 27, 1.-5. Ergänzungswerke) oder sie können nach bekannten Methoden, beispielsweise durch Oxidation der entsprechenden Alkohole oder Aldehyde oder durch Hydrolyse der entsprechenden Nitrile hergestellt werden (J. V. Metzger in "The Chemistry of Heterocyclic Compounds, Vol. 34, Part 1, Thiazol and its Derivatives", Arnold Weissberger and E. D. Ward, C. Taylor (Editor), John Wiley and Sons, S. 519 ff, I. J. Turchi in "The Chemistry of Heterocyclic Compounds, Vol. 45, Oxazoles", Arnold Weissberger and E. D. Ward, C. Taylor (Editor), John Wiley and Sons).

d) Verbindungen der Formel II f können auch gewonnen werden, indem man entsprechende Dicarbonsäureester in an sich bekannter Weise mit Aminen umsetzt und die resultierenden Amide verseift:



Zweckmäßigerweise geht man dabei so vor, daß man den Diester in einem inerten organischen Lösungsmittel löst und mit einem Amin VIII umsetzt.

Als Lösungsmittel verwendet man für diese Umsetzungen Ether, z.B. Diethylether, Methyl-tert.-butylether, Dimethoxyethan, Diethylenglykoldimethylether, Tetrahydrofuran und Dioxan; Aromaten, z. B. Benzol, Toluol, Xylol oder Mesitylen; Alkohole, z. B. Methanol, Ethanol, iso-Propanol und tert.-Butanol oder entsprechende Gemische.

Die Umsetzung kann bei Temperaturen von -100°C bis zur Rückflußtemperatur des jeweiligen Lösungsmittels bzw. -gemisches, vorzugsweise bei -60°C bis 150°C , durchgeführt werden.

Das molare Verhältnis, in dem Diester und Amin eingesetzt werden, beträgt im allgemeinen 1:1 bis 1:2, vorzugsweise 1:1 bis 1:1,2.

Die Konzentration der Edukte im Lösungsmittel beträgt im allgemeinen 0,1 bis 5 mol/l, bevorzugt 0,2 bis 2,0 mol/l.

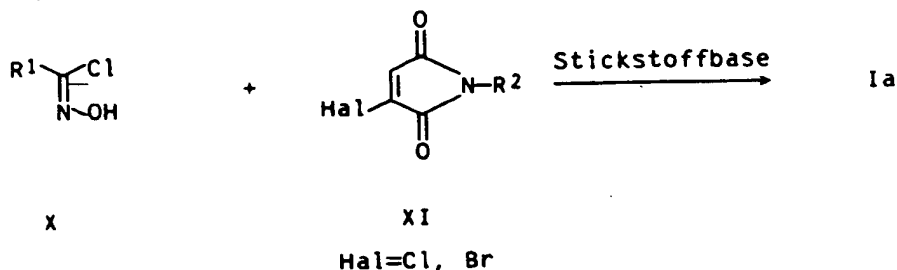
Besonders bevorzugt arbeitet man in Alkoholen wie Ethanol in Gegenwart von einem Äquivalent Amin bei 50 bis 100°C. Die für die Umsetzung benötigten Diester sind literaturbekannt oder können in Anlehnung an beschriebene Methoden hergestellt werden (Bull. Soc. Chim. Fr., 1969, 1762; J. Chem. Soc., 1953, 93).

Neben den vorstehend geschilderten Verfahren a-d zur Herstellung der Ausgangsverbindungen IIe und IIf gibt es weitere Synthesemöglichkeiten, die den folgenden Literaturstellen zu entnehmen sind:

Beilstein, Hauptwerk sowie 1.-5. Ergänzungswerk, Band 27; R. W. Wiley, The Chemistry of Heterocyclic Compounds, Five- and Six-Membered Compounds with Nitrogen and Oxygen, Interscience Publishers, New York, London (1962); Heterocyclic Chemistry, Vol. 6, Five-membered Rings with Two or More Oxygen, Sulfur or Nitrogen Atoms, Pergamon Press, 1984; J. March, Advanced Organic Chemistry, Third edition, John Wiley and Sons, 1985; Houben-Weyl, Methoden der organischen Chemie, 4. Auflage, Thieme Verlag, Bände IV, VI, VII, VIII, X; DE-A 39 32 052.

Weg B

Ein weiteres Verfahren zur Synthese von Verbindungen der Formel Ia besteht in der Umsetzung von Hydroxamsäurechloriden X mit Halogenmaleinsäureimiden XI. Dabei geht man zweckmäßigerweise so vor, daß man das Halogenmaleinsäureimid XI in einem inerten organischen Lösungsmittel vorlegt, etwa molare Mengen des Hydroxamsäurechlorids X zugibt und anschließend eine etwa doppelt molare Menge einer Base zutropft. Das Gemisch kann wie üblich aufgearbeitet werden, z.B. durch Hydrolyse mit Wasser und Absaugen oder Extraktion des Produktes mit einem organischen Lösungsmittel und Einengen des organischen Lösungsmittels.



Als Lösungsmittel für diese Umsetzungen verwendet man zweckmäßigerweise Halogenkohlenwasserstoffe wie Dichlorethan, Chlorbenzol, 1,2-Dichlorbenzol, Tetrachlorethan, Dichlormethan und Chloroform; Ether wie Diethylether, Methyl-tert.-butylether, Dimethoxyethan, Diethylenglykoldimethylether, Tetrahydrofuran und Dioxan oder Aromaten wie Benzol, Toluol und Xylol oder Gemische dieser Lösungsmittel.

Die Umsetzungen können bei Temperaturen von -10°C bis 50°C, vorzugsweise bei 0 bis 30°C, durchgeführt werden.

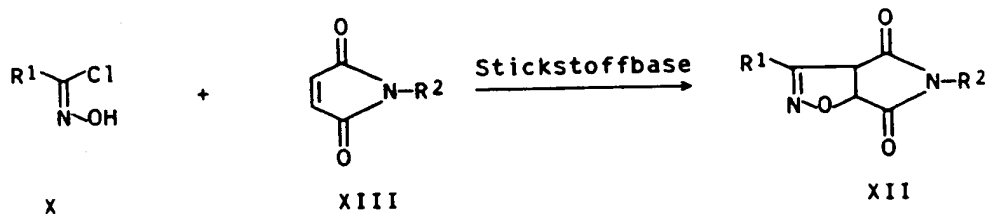
Als Basen kommen vorzugsweise Stickstoffbasen wie 2-, 3-, 4-Picolin, N,N-Dimethylanilin, N,N-Dimethylcyclohexylamin, Triethylamin (TEA), Pyridin und 1,8-Diazabicyclo(5.4.0)undec-7-en (DBU) in Betracht.

Die Reaktionspartner werden insbesondere im Molverhältnis 1:1 eingesetzt, die Stickstoffbase wird in der doppelt bis dreifach molaren Menge zugesetzt.

Die Konzentration der Edukte im Lösungsmittelgemisch beträgt im allgemeinen 0,1 bis 5 mol/l, bevorzugt 0,2 bis 2 mol/l.

Weg C:

Ein weiteres Verfahren zur Synthese der Verbindungen Ia besteht in der Oxidation von Isoxazolindicarbonsäureimiden XII, die z.B. hergestellt werden durch Umsetzung von Hydroxamsäurechloriden X mit Maleinimiden XIII. Dabei geht man zweckmäßigerweise so vor, daß man das Maleinimid XIII in einem inerten organischen Lösungsmittel vorlegt, etwa molare Mengen des Hydroxamsäurechlorids X zugibt und anschließend eine etwa molare Menge einer Base zutropft. Das Gemisch kann wie üblich aufgearbeitet werden, z.B. durch Hydrolyse mit Wasser und Absaugen oder Extraktion des Produktes mit einem organischen Lösungsmittel.



Als Lösungsmittel für diese Umsetzungen verwendet man zweckmäßigerweise Halogenkohlenwasserstoffe wie Tetrachlorethan, Dichlormethan, Dichlorethan, Chlorbenzol, 1,2-Dichlorbenzol und Chloroform oder Aromaten wie Benzol, Toluol und Xylol oder Gemische dieser Lösungsmittel.

Die Umsetzungen können bei Temperaturen von -10 bis 50°C, vorzugsweise bei 0°C bis 30°C, durchgeführt werden.

Als Basen kommen Stickstoffbasen wie 2-, 3-, 4-Picolin, N,N-Dimethylanilin, N,N-Dimethylcyclohexylamin, Triethylamin (TEA), Pyridin oder 1,8-Diazabicyclo(5.4.0)undec-7-en (DBU) in Betracht.

Die Reaktionspartner werden insbesondere in Molverhältnissen von 1 bis 1,1:1 (Maleinimid:Hydroxamsäurechlorid) eingesetzt, die Stickstoffbase wird in der einfach bis doppelt molaren Menge zugesetzt.

Die Konzentration der Edukte im Lösungsmittelgemisch beträgt im allgemeinen 0,1 bis 5 mol/l, bevorzugt 0,2 bis 2 mol/l.

Die Isoxazoldicarbonsäureimide Ia sind durch Dehydrierung der Isoxazolinimide XII zugänglich. Dabei geht man zweckmäßigerweise so vor, daß man das Isoxazolinimid XII in einem inerten organischen

Lösungsmittel vorlegt und mit etwa molaren Mengen Oxidationsmittel versetzt.

Als Lösungsmittel für die Dehydrierung kommen insbesondere aromatische Kohlenwasserstoffe wie Benzol, Toluol oder Xylol in Betracht.

Als Oxidationsmittel verwendet man bevorzugt Natriumhypochlorit, Nitrobenzol oder Chinone wie 2,3,5,6-Tetrachlor-p-benzochinon oder 5,6-Dichlor-2,3-dicyano-p-benzochinon (DDQ).

Die Umsetzungen können bei Temperaturen von 50 °C bis zur Siedetemperatur des verwendeten Lösungsmittels durchgeführt werden.

Die Reaktionspartner können im Molverhältnis 1:1 bis 1:10 (Isoxazolinimid:Oxidationsmittel) eingesetzt werden.

Im Hinblick auf die bestimmungsgemäße Verwendung der Verbindungen I kommen als Substituenten bevorzugt folgende Reste in Betracht:

X

Sauerstoff oder Schwefel;

R¹

Halogen wie Fluor, Chlor, Brom und Iod, insbesondere Fluor und Chlor;

Cyano;

C₁-C₆-Alkyl, wie Methyl, Ethyl, n-Propyl, iso-Propyl, n-Butyl, sek.-Butyl, iso-Butyl und tert.-Butyl, Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 2,2-Dimethylpropyl, 1-Ethylpropyl, Hexyl, 1-Methylpentyl, 2-Methylpentyl, 3-Methylpentyl, 4-Methylpentyl, 1,1-Dimethylbutyl, 1,2-Dimethylbutyl, 1,3-Dimethylbutyl, 2,2-Dimethylbutyl, 2,3-Dimethylbutyl, 3,3-Dimethylbutyl, 1-Ethylbutyl, 2-Ethylbutyl, 1,1,2-Trimethylpropyl, 1,2,2-Trimethylpropyl, 1-Ethyl-1-methylpropyl und 1-Ethyl-2-methylpropyl, insbesondere Methyl, Ethyl, Propyl und iso-Propyl, welches ein bis fünf Halogenatome, insbesondere Fluor- und/oder Chloratome oder einen oder zwei der folgenden Reste tragen kann:

C₃-C₈-Cycloalkyl wie Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl und Cyclohexyl, insbesondere Cyclopropyl; C₁-C₄-Alkoxy wie Methoxy, Ethoxy, n-Propoxy, 2-Methylethoxy, n-Butoxy, 1-Methylpropoxy, 2-Methylpropoxy und 1,1-Dimethylethoxy, insbesondere Methoxy, Ethoxy, 1-Methylethoxy und 1,1-Dimethylethoxy; C₁-C₄-Halogenalkoxy wie Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Dichlorfluormethoxy, 1-Fluorethoxy, 2-Fluorethoxy, 2,2-Difluorethoxy, 1,1,2,2-Tetrafluorethoxy, 2,2,2-Trifluorethoxy, 2-Chlor-1,1,2-trifluorethoxy und Pentafluorethoxy, insbesondere Trifluormethoxy und Pentafluorethoxy; C₁-C₄-Alkylthio wie Methylthio, Ethylthio, Propylthio, 1-Methylethylthio, Butylthio, 1-Methylpropylthio, 2-Methylpropylthio und 1,1-Dimethylethylthio, insbesondere Methylthio und Ethylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio wie Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Chlordifluormethylthio, 1-Fluorethylthio, 2-Fluorethylthio, 2,2-Difluorethylthio, 2,2,2-Trifluorethylthio, 2-Chlor-2,2-difluorethylthio, 2,2-Dichlor-2-fluorethylthio, 2,2,2-Trichlorethylthio und Pentafluorethylthio, insbesondere Trifluormethylthio und Pentafluorethylthio, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, wie Methylsulfonyl und Ethylsulfonyl, insbesondere Methylsulfonyl; C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl, wie Trifluormethylsulfonyl und Pentafluorethylsulfonyl, insbesondere Trifluormethylsulfonyl; oder Cyano;

C₃-C₈-Cycloalkyl wie Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cycloheptyl und Cyclooctyl, insbesondere Cyclopropyl, Cyclopentyl und Cyclohexyl, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: Alkyl wie vorstehend genannt, insbesondere Methyl oder Halogen wie vorstehend genannt, insbesondere Chlor und Fluor;

C₂-C₈-Alkenyl wie Ethenyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, 1-Methylethenyl, 1-Butenyl, 2-Butenyl, 3-Butenyl, 1-Methyl-1-propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 2-Methyl-1-propenyl, 2-Methyl-2-propenyl, 1-Pentenyl, 2-Pentenyl, 3-Pentenyl, 4-Pentenyl, 1-Methyl-1-butenyl, 2-Methyl-1-butenyl, 3-Methyl-2-butenyl, 1-Methyl-2-butenyl, 2-Methyl-2-butenyl, 1-Methyl-3-butenyl, 2-Methyl-3-butenyl, 3-Methyl-3-butenyl, 1,1-Dimethyl-2-propenyl, 1,1-Dimethyl-1-propenyl, 1,2-Dimethyl-2-propenyl, 1-Ethyl-1-propenyl, 1-Ethyl-2-propenyl, 1-Hexenyl, 2-Hexenyl, 3-Hexenyl, 4-Hexenyl, 5-Hexenyl, 1-Methyl-1-pentenyl, 2-Methyl-1-pentenyl, 3-Methyl-1-pentenyl, 4-Methyl-1-pentenyl, 1-Methyl-2-pentenyl, 2-Methyl-2-pentenyl, 3-Methyl-2-pentenyl, 4-Methyl-2-pentenyl, 1-Methyl-3-pentenyl, 2-Methyl-3-pentenyl, 3-Methyl-3-pentenyl, 4-Methyl-3-pentenyl, 1-Methyl-4-pentenyl, 2-Methyl-4-pentenyl, 3-Methyl-4-pentenyl, 4-Methyl-4-pentenyl, 1,1-Dimethyl-2-butenyl, 1,1-Dimethyl-3-butenyl, 1,2-Dimethyl-1-butenyl, 1,2-Dimethyl-2-butenyl, 1,2-Dimethyl-3-butenyl, 1,3-Dimethyl-1-butenyl, 1,3-Dimethyl-2-butenyl, 1,3-Dimethyl-3-butenyl, 1,3-Dimethyl-1-butenyl, 2,3-Dimethyl-1-butenyl, 2,3-Dimethyl-2-butenyl, 2,3-Dimethyl-3-butenyl, 3,3-Dimethyl-1-butenyl, 1-Ethyl-1-butenyl, 1-Ethyl-2-butenyl, 1-Ethyl-3-butenyl, 2-Ethyl-1-butenyl, 2-Ethyl-2-butenyl, 2-Ethyl-3-butenyl, 1,1,2-Trimethyl-2,2-propenyl, 1-Ethyl-1-methyl-2-propenyl, 1-Ethyl-2-methyl-1-propenyl und 1-Ethyl-2-methyl-2-propenyl, insbesondere 2-Propenyl, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: Halogen wie oben genannt, insbesondere Fluor und Chlor; Alkoxy wie oben genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy, und/oder ein Phenyl, das seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: Alkyl wie vorstehend genannt, insbesondere Methyl, Ethyl und iso-Propyl; Halogenalkyl wie vorste-

hend genannt, insbesondere Trifluormethyl und Chlordifluormethyl; Alkoxy wie vorstehend genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy; Halogenalkoxy wie vorstehend genannt, insbesondere Trifluormethoxy, Pentafluorethoxy und Trichlormethoxy; Alkylthio wie vorstehend genannt, insbesondere Methylthio und Ethylthio; Halogenalkylthio wie vorstehend genannt, insbesondere Difluormethylthio, Pentafluorethylthio und Trifluormethylthio; Halogen wie vorstehend genannt, insbesondere Fluor und Chlor, Cyano oder Nitro;

5 C₂-C₆-Alkynyl wie Ethynyl, 1-Propynyl, 2-Propynyl, 1-Butynyl, 2-Butynyl, 3-Butynyl, 1-Methyl-2-propynyl, 1-Pentynyl, 2-Pentynyl, 3-Pentynyl, 4-Pentynyl, 1-Methyl-3-butynyl, 2-Methyl-3-butynyl, 1-Methyl-2-butynyl, 3-Methyl-1-butynyl, 1,1-Dimethyl-2-propynyl, 1-Ethyl-2-propynyl, 1-Hexynyl, 2-Hexynyl, 3-Hexynyl, 4-Alkynyl, 4-Hexynyl, 1-Methyl-2-pentynyl, 1-Methyl-3-pentynyl, 1-Methyl-4-pentynyl, 2-Methyl-3-pentynyl, 2-Methyl-4-pentynyl, 3-Methyl-pentynyl, 3-Methyl-4-pentynyl, 4-Methyl-1-pentynyl, 4-Methyl-2-pentynyl, 1,1-Dimethyl-2-butynyl, 1,1-Dimethyl-3-butynyl, 1,2-Dimethyl-3-butynyl, 2,2-Dimethyl-4-butynyl, 3,3-Dimethyl-1-butynyl, 1-Ethyl-2-butynyl, 1-Ethyl-3-butynyl, 2-Ethyl-3-butynyl und 1-Ethyl-1-methyl-2-propynyl, insbesondere 2-Propynyl, welches einen bis drei der folgenden Reste tragen kann: Halogen wie oben genannt, insbesondere Iod; Alkoxy wie oben genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy, und/oder ein Phenyl, das seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: Alkyl wie vorstehend genannt, insbesondere Methyl, Ethyl und iso-Propyl;

15 Halogenalkyl wie vorstehend genannt, insbesondere Trifluormethyl und Chlordifluormethyl; Alkoxy wie vorstehend genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy; Halogenalkoxy wie vorstehend genannt, insbesondere Trifluormethoxy, Pentafluorethoxy und Trichlormethoxy, Alkylthio wie vorstehend genannt, insbesondere Methylthio und Ethylthio; Halogenalkylthio wie vorstehend genannt, insbesondere Difluormethylthio, Pentafluorethylthio und Trifluormethylthio; Halogen wie vorstehend genannt, insbesondere Fluor und Chlor, Cyano oder Nitro;

20 C₂-C₆-Alkenyloxy wie Vinyloxy, 2-Propenyloxy, 2-Methyl-2-propenyloxy, (E)-2-Butenyloxy, (Z)-2-Butenyloxy, 1,3-Dimethyl-2-butenyloxy, 2-Pentenyloxy, 2-Hexenyloxy, insbesondere 2-Propenyloxy und (E)-2-Butenyloxy;

25 C₃-C₆-Alkynyloxy wie 2-Propynyloxy, 2-Butynyloxy, 1-Ethyl-2-butynyloxy, 1-Methyl-2-propynyloxy, 2-Pentynyloxy, 2-Hexynyloxy, insbesondere 2-Propynyloxy;

C₁-C₄-Alkylthio wie obenstehend genannt, insbesondere Methylthio und Ethylthio;

C₁-C₄-Halogenalkylthio wie obenstehend genannt, insbesondere Difluormethylthio, Pentafluorethylthio und Trifluormethylthio;

30 C₁-C₄-Alkylsulfonyl wie vorstehend genannt, insbesondere Methylsulfonyl;

C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl wie vorstehend genannt, insbesondere Trifluormethylsulfonyl;

Phenoxy oder Phenylthio, wobei diese Reste ein bis drei der folgenden Gruppen tragen können: C₁-C₄-Alkyl wie vorstehend genannt, insbesondere Methyl, Ethyl und iso-Propyl; C₁-C₄-Halogenalkyl wie vorstehend genannt, insbesondere Trifluormethyl und Chlordifluormethyl; C₁-C₄-Alkoxy wie vorstehend genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy; C₁-C₄-Halogenalkoxy wie vorstehend genannt, insbesondere Trifluormethoxy, Pentafluorethoxy und Trichlormethoxy; C₁-C₄-Alkylthio wie vorstehend genannt, insbesondere Methylthio und Ethylthio; C₁-C₄-Halogenalkylthio wie vorstehend genannt, insbesondere Difluormethylthio, Pentafluorethylthio und Trifluormethylthio; Halogen wie vorstehend genannt, insbesondere Fluor und Chlor, Cyano oder Nitro;

40 ein 5- bis 6-gliedriger heterocyclischer Rest enthaltend ein oder zwei Heteroatome, ausgewählt aus der Gruppe Sauerstoff, Schwefel und Stickstoff, wie 2-Tetrahydrofuran-yl, 3-Tetrahydrofuran-yl, 4-Tetrahydropyran-yl, 2-Tetrahydropyran-yl, 3-Tetrahydropyran-yl, 3-Furan-yl, 2-Thienyl, 3-Thienyl, 2-Furan-yl, 3-Tetrahydrothien-yl, 3-Sulfolan-yl, 2-Tetrahydropyran-yl, 5-Isloxazol-yl, 3-Isloxazol-yl, 4-Isloxazol-yl, 5-Issothiazol-yl, 4-Issothiazol-yl, 3-Issothiazol-yl, 2-Oxazol-yl, 4-Thiazol-yl, 4-Oxazol-yl, 2-Thiazol-yl, 5-Oxazol-yl, 5-Thiazol-yl, 2-Imidazol-yl, 4-Imidazol-yl, 5-Imidazol-yl, 3-Pyrrol-yl, 2-Pyrrol-yl, 3-Pyrazol-yl, 4-Pyrazol-yl, 5-Pyrazol-yl, 4-Pyrid-yl, 3-Pyrid-yl und 2-Pyrid-yl, wobei diese Ringe ein oder zwei der folgenden Reste tragen können: Alkyl wie oben genannt, insbesondere Methyl; Halogen wie oben genannt, insbesondere Fluor und Chlor; Alkoxy wie oben genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy oder Alkoxycarbonyl wie Methoxycarbonyl und Ethoxycarbonyl, insbesondere Methoxycarbonyl;

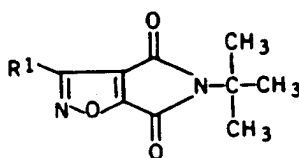
50 ein kondensierter aromatischer Rest, ausgewählt aus der Gruppe Benzofuran-2-yl, Benzofuran-3-yl, Isobenzofuran-2-yl, Benzothiophen-2-yl, Benzothiophen-3-yl, Isobenzothiophen-2-yl, Indol-2-yl, Indol-3-yl, 1,2-Benzisoxal-3-yl, Benzoxazol-2-yl, 1,2-Benzisothiazol-3-yl, Benzothiazol-2-yl, Indazol-3-yl, (1H)-Benzimidazol-2-yl, Chinolin-3-yl, Chinolin-5-yl, Chinolin-6-yl, Chinolin-8-yl, Isochinolin-1-yl und Isochinolin-5-yl, wobei dieser Rest ein oder zwei der folgenden Reste tragen kann: Alkyl wie oben genannt, insbesondere Methyl; Halogen wie oben genannt, insbesondere Fluor und Chlor; Alkoxy wie oben genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy oder Alkoxycarbonyl wie Methoxycarbonyl und Ethoxycarbonyl, insbesondere Methoxycarbonyl;

55 Phenyl oder Phenyl-C₁-C₄-alkyl, z.B. Benzyl oder Phenylethyl, wobei der Phenylrest jeweils eine bis drei

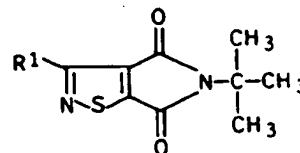
- der folgenden Gruppen tragen kann: Alkyl wie oben genannt, insbesondere Methyl, Ethyl und iso-Propyl; Halogenalkyl wie vorstehend genannt, insbesondere Trifluormethyl und Chlordifluormethyl; Alkoxy wie vorstehend genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy; Halogenalkoxy wie vorstehend genannt, insbesondere Trifluormethoxy, Pentafluorethoxy und Trichlormethoxy; Alkylthio wie vorstehend genannt, insbesondere Methylthio und Ethylthio; Halogenalkylthio wie vorstehend genannt, insbesondere Difluormethylthio, Pentafluorethylthio und Trifluormethylthio; Halogen wie vorstehend genannt, insbesondere Fluor und Chlor, Cyano oder Nitro;
- 5 R^2
Wasserstoff; Hydroxy;
- 10 C_1 - C_4 -Alkoxy wie unter R^1 genannt; insbesondere Methoxy und Ethoxy;
 C_1 - C_6 -Alkyl wie unter R^1 genannt, insbesondere Methyl, Ethyl, Propyl, 1-Methylethyl, Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl und 1,1-Dimethylethyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,1-Dimethylbutyl, 1,2-Dimethylpropyl, welches eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: Cyano, Alkoxy-alkoxy wie Methoxy-methoxy, Ethoxy-ethoxy insbesondere Methoxy-methoxy, Alkoxy wie unter R^1 genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy;
- 15 Halogenalkoxy wie unter R^1 genannt, insbesondere Trifluormethoxy; Alkylthio wie unter R^1 genannt, insbesondere Methylthio und Ethylthio; Halogenalkylthio wie unter R^1 genannt, insbesondere Trifluormethylthio; Dialkylamino insbesondere Dimethylamino und Diethylamino; Halogen wie unter R^1 genannt, insbesondere Fluor und Chlor; Cycloalkyl wie bei R^1 genannt, insbesondere Cyclopropyl, Cyclopentyl und Cyclohexyl; oder einmal Phenyl, wobei der Phenylrest seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann:
- 20 Halogen; Cyano; Nitro; Alkyl wie unter R^1 genannt, insbesondere Methyl und Ethyl; Halogenalkyl wie unter R^1 genannt, insbesondere Trifluormethyl; Alkoxy wie unter R^1 genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy; Halogenalkoxy wie unter R^1 genannt, insbesondere Trifluormethoxy; Alkylthio wie unter R^1 genannt, insbesondere Methylthio und Ethylthio; oder Halogenalkylthio wie unter R^1 genannt, insbesondere Trifluormethylthio;
- 25 C_3 - C_8 -Cycloalkyl wie unter R^1 genannt, insbesondere Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl und Cyclohexyl, das eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: Alkyl wie unter R^1 genannt, insbesondere Methyl, Ethyl und 1-Methylethyl; Halogenalkyl wie unter R^1 genannt, insbesondere Trifluormethyl; Alkoxy wie unter R^1 genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy; Halogenalkoxy wie unter R^1 genannt, insbesondere Trifluormethoxy; Halogen wie unter R^1 genannt, insbesondere Fluor und Chlor; Nitro oder Cyano;
- 30 C_3 - C_6 -Alkenyl wie unter R^1 genannt, insbesondere 2-Propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 1,1-Dimethyl-2-propenyl und 2-Butenyl, welches ein-bis dreimal durch Halogen wie unter R^1 genannt, insbesondere Fluor und Chlor, und/oder einmal durch Phenyl substituiert sein kann, wobei der Phenylrest seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: Alkyl wie unter R^1 genannt, insbesondere Methyl und Ethyl; Halogenalkyl wie unter R^1 genannt, insbesondere Trifluormethyl; Alkoxy wie unter R^1 genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy; Halogenalkoxy wie unter R^1 genannt, insbesondere Trifluormethoxy; Alkylthio wie unter R^1 genannt, insbesondere Methylthio und Ethylthio; Halogenalkylthio wie unter R^1 genannt, insbesondere Trifluormethylthio; Halogen wie unter R^1 genannt, insbesondere Fluor und Chlor; Cyano oder Nitro;
- 35 C_3 - C_6 -Alkynyl wie unter R^1 genannt, insbesondere 2-Propinyl, 1-Methyl-2-propinyl und 1,1-Dimethyl-2-propinyl, welches ein- bis dreimal durch Halogen wie unter R^1 genannt, insbesondere Fluor und Chlor; und/oder einmal durch Phenyl substituiert sein kann, wobei der Phenylrest seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: Alkyl wie unter R^1 genannt, insbesondere Methyl und Ethyl; Halogenalkyl wie unter R^1 genannt, insbesondere Trifluormethyl, Alkoxy wie unter R^1 genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy; Halogenalkoxy wie unter R^1 genannt, insbesondere Trifluormethylthio; Halogen wie unter R^1 genannt, insbesondere Fluor und Chlor; Cyano oder Nitro;
- 40 Ethylthio; Halogenalkylthio wie unter R^1 genannt, insbesondere Trifluormethylthio; Halogen wie unter R^1 genannt, insbesondere Fluor und Chlor; Cyano oder Nitro;
 C_1 - C_4 -Dialkylamino, insbesondere Dimethylamino und Diethylamino;
- 45 ein 5- bis 6-gliedriger heterocyclischer Rest mit einem oder zwei Heteroatomen, ausgewählt aus der Gruppe Sauerstoff, Schwefel oder Stickstoff wie unter R^1 genannt, der ein- bis dreimal durch Alkyl wie unter R^1 genannt, insbesondere Methyl, Ethyl und 1-Methylethyl; oder Halogen wie unter R^1 genannt, insbesondere Fluor und Chlor substituiert sein kann;
- 50 ein kondensierter aromatischer Rest, ausgewählt aus der Gruppe Benzofuran-2-yl, Benzofuran-3-yl, Isobenzofuran-2-yl, Benzothiophen-2-yl, Benzothiophen-3-yl, Isobenzothiophen-2-yl, Indol-2-yl, Indol-3-yl, 1,2-Benzisoxal-3-yl, Benzoxazol-2-yl, 1,2-Benzisothiazol-3-yl, Benzothiazol-2-yl, Indazol-3-yl, (1H)-Benzimidazol-2-yl, Chinolin-3-yl, Chinolin-5-yl, Chinolin-6-yl, Chinolin-8-yl, Isochinolin-1-yl und Isochinolin-5-yl, wobei dieser Rest ein- bis dreimal durch C_1 - C_4 -Alkyl oder Halogen substituiert sein kann;
- 55 Phenyl, das eine bis vier der folgenden Gruppen tragen kann: Alkyl wie unter R^1 genannt, insbesondere Methyl, Ethyl und 1-Methylethyl; Halogenalkyl wie unter R^1 genannt, insbesondere Trifluormethyl; Alkoxy

wie unter R¹ genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy; Halogenalkoxy wie unter R¹ genannt, insbesondere Trifluormethoxy; Alkylthio wie unter R¹ genannt, insbesondere Methylthio und Ethylthio; Halogenalkylthio wie unter R¹ genannt, insbesondere Trifluormethylthio; Halogen wie unter R¹ genannt, insbesondere Fluor und Chlor; Nitro, Cyano, Formyl; C₁-C₄-Alkanoyl wie Acetyl, Propionyl, Butyryl, insbesondere Acetyl; Halogenalkanoyl wie Trifluoracetyl, Trichloracetyl, Pentafluorpropionyl, insbesondere Trifluoracetyl; oder Alkoxy-carbonyl wie unter R¹ genannt, insbesondere Methoxycarbonyl; Naphthyl, das ein- bis dreimal durch Alkyl wie unter R¹ genannt, insbesondere Methyl und Ethyl, oder Halogen wie unter R¹ genannt, insbesondere Fluor und Chlor substituiert sein kann.

Beispiele für herbizid wirksame Verbindungen der Formel Ia und Ib sind nachstehend im einzelnen aufgeführt:

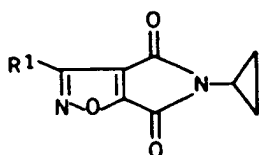


oder

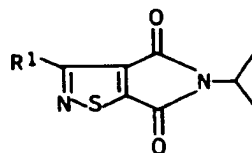


wobei R¹ jeweils die folgende Bedeutung hat:

Wasserstoff, Fluor, Chlor, Methyl, Ethyl, Propyl, 1-Methylethyl, Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl, 1,1-Dimethylethyl, Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 2,2-Dimethylpropyl, cyclo-Propyl, cyclo-Butyl, cyclo-Pentyl, cyclo-Hexyl, cyclo-Heptyl, cyclo-Octyl, 1-Methyl-cyclo-Propyl, cyclo-Propyl-methyl, 1-(cyclo-Propyl)-ethyl, Chlormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Trifluormethyl, Pentafluorethyl, Difluormethyl, 1-Chlorethyl, 2-Chlorethyl, 1-Methyl-1-chlorethyl, 1-Methyl-2-chlorethyl, Methoxymethyl, 1-Methylmethoxymethyl, 1-Methyl-2-methoxyethyl, 1-Methylethoxymethyl, Ethoxymethyl, Ethenyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, 1-Methylethenyl, 1-Ethylethenyl, 2-Phenylethenyl, 1-Butenyl, 2-Butenyl, 3-Butenyl, 1-Methyl-1-propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 2-Methyl-2-propenyl, 2-Propinyl, Methoxy, Ethoxy, Propoxy, 1-Methylethoxy, Butoxy, 1-Methylpropoxy, 1,1-Dimethylethoxy, Methylthio, Ethylthio, Chlordifluormethoxy, Trifluormethoxy, Trichlormethylthio, Phenyl, 2-Fluorphenyl, 3-Fluorphenyl, 4-Fluorphenyl, 2-Chlorphenyl, 3-Chlorphenyl, 4-Chlorphenyl, 2-Methylphenyl, 3-Methylphenyl, 4-Methylphenyl, 2-Trifluormethylphenyl, 3-Trifluormethylphenyl, 4-Trifluormethylphenyl, 2-Methoxyphenyl, 3-Methoxyphenyl, 4-Methoxyphenyl, 2,4-Dichlorphenyl, 2,4,6-Trimethylphenyl, Phenoxy, Phenylthio, 2-Chlorphenoxy, 3-Chlorphenoxy, 4-Chlorphenoxy, 2,4-Dichlorphenoxy, Benzyl, 2-Chlorbenzyl, 3-Chlorbenzyl, 4-Chlorbenzyl, 2-Fluorbenzyl, 3-Fluorbenzyl, 4-Fluorbenzyl, 2-Thienyl, 3-Thienyl, 2-Pyridyl, 3-Pyridyl, 4-Pyridyl;



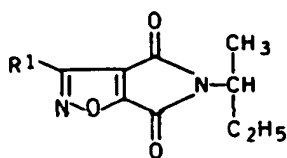
oder



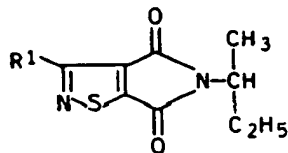
wobei R¹ jeweils die folgende Bedeutung hat:

Wasserstoff, Fluor, Chlor, Methyl, Ethyl, Propyl, 1-Methylethyl, Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl, 1,1-Dimethylethyl, Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 2,2-Dimethylpropyl, cyclo-Propyl, cyclo-Butyl, cyclo-Pentyl, cyclo-Hexyl, cyclo-Heptyl, cyclo-Octyl, 1-Methyl-cyclo-Propyl, cyclo-Propyl-methyl, 1-(cyclo-Propyl)-ethyl, Chlormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Trifluormethyl, Pentafluorethyl, Difluormethyl, 1-Chlorethyl, 2-Chlorethyl, 1-Methyl-1-chlorethyl, 1-Methyl-2-chlorethyl, Methoxymethyl, 1-Methylmethoxymethyl, 1-Methyl-2-methoxyethyl, 1-Methylethoxymethyl, Ethoxymethyl, Ethenyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, 1-Methylethenyl, 1-Ethylethenyl, 2-Phenylethenyl, 1-Butenyl, 2-Butenyl, 3-Butenyl, 1-Methyl-1-propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 2-Methyl-2-propenyl, 2-Propinyl, Methoxy, Ethoxy, Propoxy, 1-Methylethoxy, Butoxy, 1-Methylpropoxy, 1,1-Dimethylethoxy, Methylthio, Ethylthio, Chlordifluormethoxy, Trifluormethoxy, Trichlormethylthio, Phenyl, 2-Fluorphenyl, 3-Fluorphenyl, 4-Fluorphenyl, 2-Chlorphenyl, 3-Chlorphenyl, 4-Chlorphenyl, 2-Methylphenyl, 3-Methylphenyl, 4-Methylphenyl, 2-Trifluormethylphenyl, 3-Trifluormethylphenyl, 4-Trifluormethylphenyl, 2-Methoxyphenyl,

nyl, 3-Methoxyphenyl, 4-Methoxyphenyl, 2,4-Dichlorphenyl, 2,4,6-Trimethylphenyl, Phenoxy, Phenylthio, 2-Chlorphenoxy, 3-Chlorphenoxy, 4-Chlorphenoxy, 2,4-Dichlorphenoxy, Benzyl, 2-Chlorbenzyl, 3-Chlorbenzyl, 4-Chlorbenzyl, 2-Fluorbenzyl, 3-Fluorbenzyl, 4-Fluorbenzyl, 2-Thienyl, 3-Thienyl, 2-Pyridyl, 3-Pyridyl, 4-Pyridyl;

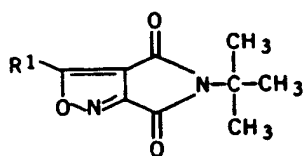


oder

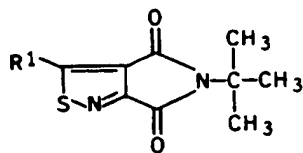


wobei R¹ jeweils die folgende Bedeutung hat:

Wasserstoff, Fluor, Chlor, Methyl, Ethyl, Propyl, 1-Methylethyl, Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl, 1,1-Dimethylethyl, Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 2,2-Dimethylpropyl, cyclo-Propyl, cyclo-Butyl, cyclo-Pentyl, cyclo-Hexyl, cyclo-Heptyl, cyclo-Octyl, 1-Methyl-cyclo-Propyl, cyclo-Propyl-methyl, 1-(cyclo-Propyl)-ethyl, Chlormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Trifluormethyl, Pentafluorethyl, Difluormethyl, 1-Chlorethyl, 2-Chlorethyl, 1-Methyl-1-chlorethyl, 1-Methyl-2-chlorethyl, Methoxymethyl, 1-Methylmethoxymethyl, 1-Methyl-2-methoxyethyl, 1-Methylethoxymethyl, Ethoxymethyl, Ethenyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, 1-Methylethenyl, 1-Ethylethenyl, 2-Phenylethenyl, 1-Butenyl, 2-Butenyl, 3-Butenyl, 1-Methyl-1-propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 2-Methyl-2-propenyl, 2-Propinyl, Methoxy, Ethoxy, Propoxy, 1-Methylethoxy, Butoxy, 1-Methylpropoxy, 1,1-Dimethylethoxy, Methylthio, Ethylthio, Chlordifluormethoxy, Trifluormethoxy, Trichlormethylthio, Phenyl, 2-Fluorphenyl, 3-Fluorphenyl, 4-Fluorphenyl, 2-Chlorphenyl, 3-Chlorphenyl, 4-Chlorphenyl, 2-Methylphenyl, 3-Methylphenyl, 4-Methylphenyl, 2-Trifluormethylphenyl, 3-Trifluormethylphenyl, 4-Trifluormethylphenyl, 2-Methoxyphenyl, 3-Methoxyphenyl, 4-Methoxyphenyl, 2,4-Dichlorphenyl, 2,4,6-Trimethylphenyl, Phenoxy, Phenylthio, 2-Chlorphenoxy, 3-Chlorphenoxy, 4-Chlorphenoxy, 2,4-Dichlorphenoxy, Benzyl, 2-Chlorbenzyl, 3-Chlorbenzyl, 4-Chlorbenzyl, 2-Fluorbenzyl, 3-Fluorbenzyl, 4-Fluorbenzyl, 2-Thienyl, 3-Thienyl, 2-Pyridyl, 3-Pyridyl, 4-Pyridyl;



oder



wobei R¹ jeweils die folgende Bedeutung hat:

Wasserstoff, Fluor, Chlor, Methyl, Ethyl, Propyl, 1-Methylethyl, Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl, 1,1-Dimethylethyl, Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 2,2-Dimethylpropyl, cyclo-Propyl, cyclo-Butyl, cyclo-Pentyl, cyclo-Hexyl, cyclo-Heptyl, cyclo-Octyl, 1-Methyl-cyclo-Propyl, cyclo-Propyl-methyl, 1-(cyclo-Propyl)-ethyl, Chlormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Trifluormethyl, Pentafluorethyl, Difluormethyl, 1-Chlorethyl, 2-Chlorethyl, 1-Methyl-1-chlorethyl, 1-Methyl-2-chlorethyl, Methoxymethyl, 1-Methylmethoxymethyl, 1-Methyl-2-methoxyethyl, 1-Methylethoxymethyl, Ethoxymethyl, Ethenyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, 1-Methylethenyl, 1-Ethylethenyl, 2-Phenylethenyl, 1-Butenyl, 2-Butenyl, 3-Butenyl, 1-Methyl-1-propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 2-Methyl-2-propenyl, 2-Propinyl, Methoxy, Ethoxy, Propoxy, 1-Methylethoxy, Butoxy, 1-Methylpropoxy, 1,1-Dimethylethoxy, Methylthio, Ethylthio, Chlordifluormethoxy, Trifluormethoxy, Trichlormethylthio, Phenyl, 2-Fluorphenyl, 3-Fluorphenyl, 4-Fluorphenyl, 2-Chlorphenyl, 3-Chlorphenyl, 4-Chlorphenyl, 2-Methylphenyl, 3-Methylphenyl, 4-Methylphenyl, 2-Trifluormethylphenyl, 3-Trifluormethylphenyl, 4-Trifluormethylphenyl, 2-Methoxyphenyl, 3-Methoxyphenyl, 4-Methoxyphenyl, 2,4-Dichlorphenyl, 2,4,6-Trimethylphenyl, Phenoxy, Phenylthio, 2-Chlorphenoxy, 3-Chlorphenoxy, 4-Chlorphenoxy, 2,4-Dichlorphenoxy, Benzyl, 2-Chlorbenzyl, 3-Chlorbenzyl, 4-Chlorbenzyl, 2-Fluorbenzyl, 3-Fluorbenzyl, 4-Fluorbenzyl, 2-Thienyl, 3-Thienyl, 2-Pyridyl, 3-Pyridyl, 4-Pyridyl;



wobei R¹ jeweils die folgende Bedeutung hat:

- 10 Wasserstoff, Fluor, Chlor, Methyl, Ethyl, Propyl, 1-Methylethyl, Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl, 1,1-Dimethylethyl, Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 2,2-Dimethylpropyl, cyclo-Propyl, cyclo-Butyl, cyclo-Pentyl, cyclo-Hexyl, cyclo-Heptyl, cyclo-Octyl, 1-Methyl-cyclo-Propyl, cyclo-Propyl-methyl, 1-(cyclo-Propyl)-ethyl, Chlormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Trifluormethyl, Pentafluorethyl, Difluormethyl, 1-Chlorethyl, 2-Chlorethyl, 1-Methyl-1-chlorethyl, 1-Methyl-2-chlorethyl, Methoxymethyl, 1-Methylmethoxymethyl, 1-Methyl-2-methoxyethyl, 1-Methylethoxymethyl, Ethoxymethyl, Ethenyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, 1-Methylethenyl, 1-Ethylethenyl, 2-Phenylethenyl, 1-Butenyl, 2-Butenyl, 3-Butenyl, 1-Methyl-1-propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 2-Methyl-2-propenyl, 2-Propinyl, Methoxy, Ethoxy, Propoxy, 1-Methylethoxy, Butoxy, 1-Methylpropoxy, 1,1-Dimethylethoxy, Methylthio, Ethylthio, Chlordifluormethoxy, Trifluormethoxy, Trichlormethylthio, Phenyl, 2-Fluorphenyl, 3-Fluorphenyl, 4-Fluorphenyl, 2-Chlorphenyl, 3-Chlorphenyl, 4-Chlorphenyl, 2-Methylphenyl, 3-Methylphenyl, 4-Methylphenyl, 2-Trifluormethylphenyl, 3-Trifluormethylphenyl, 4-Trifluormethylphenyl, 2-Methoxyphenyl, 3-Methoxyphenyl, 4-Methoxyphenyl, 2,4-Dichlorphenyl, 2,4,6-Trimethylphenyl, Phenoxy, Phenylthio, 2-Chlorphenoxy, 3-Chlorphenoxy, 4-Chlorphenoxy, 2,4-Dichlorphenoxy, Benzyl, 2-Chlorbenzyl, 3-Chlorbenzyl, 4-Chlorbenzyl, 2-Fluorbenzyl, 3-Fluorbenzyl, 4-Fluorbenzyl, 2-Thienyl, 3-Thienyl, 2-Pyridyl, 3-Pyridyl, 4-Pyridyl;



35 wobei R¹ jeweils die folgende Bedeutung hat:

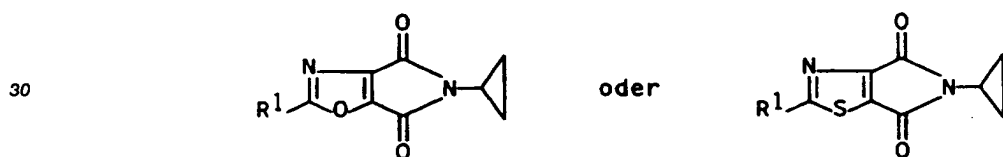
- 40 Wasserstoff, Fluor, Chlor, Methyl, Ethyl, Propyl, 1-Methylethyl, Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl, 1,1-Dimethylethyl, Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 2,2-Dimethylpropyl, cyclo-Propyl, cyclo-Butyl, cyclo-Pentyl, cyclo-Hexyl, cyclo-Heptyl, cyclo-Octyl, 1-Methyl-cyclo-Propyl, cyclo-Propyl-methyl, 1-(cyclo-Propyl)-ethyl, Chlormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Trifluormethyl, Pentafluorethyl, Difluormethyl, 1-Chlorethyl, 2-Chlorethyl, 1-Methyl-1-chlorethyl, 1-Methyl-2-chlorethyl, Methoxymethyl, 1-Methylmethoxymethyl, 1-Methyl-2-methoxyethyl, 1-Methylethoxymethyl, Ethoxymethyl, Ethenyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, 1-Methylethenyl, 1-Ethylethenyl, 2-Phenylethenyl, 1-Butenyl, 2-Butenyl, 3-Butenyl, 1-Methyl-1-propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 2-Methyl-2-propenyl, 2-Propinyl, Methoxy, Ethoxy, Propoxy, 1-Methylethoxy, Butoxy, 1-Methylpropoxy, 1,1-Dimethylethoxy, Methylthio, Ethylthio, Chlordifluormethoxy, Trifluormethoxy, Trichlormethylthio, Phenyl, 2-Fluorphenyl, 3-Fluorphenyl, 4-Fluorphenyl, 2-Chlorphenyl, 3-Chlorphenyl, 4-Chlorphenyl, 2-Methylphenyl, 3-Methylphenyl, 4-Methylphenyl, 2-Trifluormethylphenyl, 3-Trifluormethylphenyl, 4-Trifluormethylphenyl, 2-Methoxyphenyl, 3-Methoxyphenyl, 4-Methoxyphenyl, 2,4-Dichlorphenyl, 2,4,6-Trimethylphenyl, Phenoxy, Phenylthio, 2-Chlorphenoxy, 3-Chlorphenoxy, 4-Chlorphenoxy, 2,4-Dichlorphenoxy, Benzyl, 2-Chlorbenzyl, 3-Chlorbenzyl, 4-Chlorbenzyl, 2-Fluorbenzyl, 3-Fluorbenzyl, 4-Fluorbenzyl, 2-Thienyl, 3-Thienyl, 2-Pyridyl, 3-Pyridyl, 4-Pyridyl.

Beispiele für herbizid wirksame Verbindungen der Formel Ic sind nachstehend im einzelnen aufgeführt:



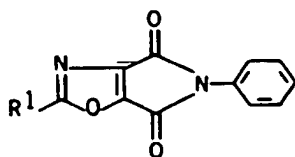
wobei R¹ jeweils die folgende Bedeutung hat:

- 10 Wasserstoff, Fluor, Chlor, Cyano, Methyl, Ethyl, Propyl, 1-Methylethyl, Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl, 1,1-Dimethylethyl, Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 2,2-Dimethylpropyl, cyclo-Propyl, cyclo-Butyl, cyclo-Pentyl, cyclo-Hexyl, cyclo-Heptyl, cyclo-Octyl, 1-Methyl-cyclo-Propyl, cyclo-Propyl-methyl, 1-(cyclo-Propyl)-ethyl, Chlormethyl, Dichlormethyl, Tri-
 15 chlormethyl, Chlordifluormethyl, Trifluormethyl, Pentafluorethyl, Difluormethyl, 1-Chlorethyl, 2-Chlorethyl, 1-Methyl-1-chlorethyl, 1-Methyl-2-chlorethyl, Methoxymethyl, 1-Methylmethoxymethyl, 1-Methyl-2-methoxyethyl, 1-Methylethoxymethyl, Ethoxymethyl, Ethenyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, 1-Methylethenyl, 1-Ethylethenyl, 2-Phenylethenyl, 1-Butenyl, 2-Butenyl, 3-Butenyl, 1-Methyl-1-propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 2-Methyl-2-propenyl, 2-Propinyl, Methoxy, Ethoxy, Propoxy, 1-Methylethoxy, Butoxy, 1-Methylpropoxy, 1,1-Dimethylethoxy, Methylthio, Ethylthio, Chlordifluormethoxy, Trifluormethoxy, Trichlormethylthio, Phenyl, 2-Fluorphenyl, 3-Fluorphenyl, 4-Fluorphenyl, 2-Chlorphenyl, 3-Chlorphenyl, 4-Chlorphenyl, 2-Methylphenyl, 3-Methylphenyl, 4-Methylphenyl, 2-Trifluormethylphenyl, 3-Trifluormethylphenyl, 4-Trifluormethylphenyl, 2-Methoxyphenyl, 3-Methoxyphenyl, 4-Methoxyphenyl, 2,4-Dichlorphenyl, 2,4,6-Trimethylphenyl, Phenoxy, Phenylthio, 2-Chlorphenoxy, 3-Chlorphenoxy, 4-Chlorphenoxy, 2,4-Dichlorphenoxy, Benzyl, 2-Chlorbenzyl, 3-Chlorbenzyl, 4-Chlorbenzyl, 2-Fluorbenzyl, 3-Fluorbenzyl, 4-Fluorbenzyl, 2-Thienyl, 3-Thienyl, 2-Pyridyl, 3-Pyridyl,
 25 4-Pyridyl;

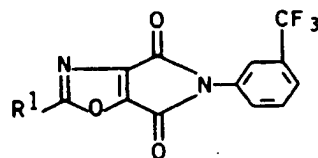


wobei R¹ jeweils die folgende Bedeutung hat:

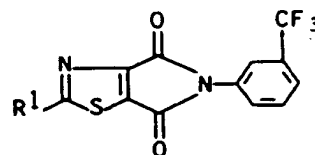
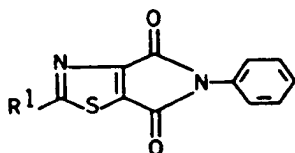
- 35 Wasserstoff, Fluor, Chlor, Cyano, Methyl, Ethyl, Propyl, 1-Methylethyl, Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl, 1,1-Dimethylethyl, Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 2,2-Dimethylpropyl, cyclo-Propyl, cyclo-Butyl, cyclo-Pentyl, cyclo-Hexyl, cyclo-Heptyl, cyclo-Octyl, 1-Methyl-cyclo-Propyl, cyclo-Propyl-methyl, 1-(cyclo-Propyl)-ethyl, Chlormethyl, Dichlormethyl, Tri-
 40 chlormethyl, Chlordifluormethyl, Trifluormethyl, Pentafluorethyl, Difluormethyl, 1-Chlorethyl, 2-Chlorethyl, 1-Methyl-1-chlorethyl, 1-Methyl-2-chlorethyl, Methoxymethyl, 1-Methylmethoxymethyl, 1-Methyl-2-methoxyethyl, 1-Methylethoxymethyl, Ethoxymethyl, Ethenyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, 1-Methylethenyl, 1-Ethylethenyl, 2-Phenylethenyl, 1-Butenyl, 2-Butenyl, 3-Butenyl, 1-Methyl-1-propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 2-Methyl-2-propenyl, 2-Propinyl, Methoxy, Ethoxy, Propoxy, 1-Methylethoxy, Butoxy, 1-Methylpropoxy, 1,1-Dimethylethoxy, Methylthio, Ethylthio, Chlordifluormethoxy, Trifluormethoxy, Trichlormethylthio, Phenyl, 2-Fluorphenyl, 3-Fluorphenyl, 4-Fluorphenyl, 2-Chlorphenyl, 3-Chlorphenyl, 4-Chlorphenyl, 2-Methylphenyl, 3-Methylphenyl, 4-Methylphenyl, 2-Trifluormethylphenyl, 3-Trifluormethylphenyl, 4-Trifluormethylphenyl, 2-Methoxyphenyl, 3-Methoxyphenyl, 4-Methoxyphenyl, 2,4-Dichlorphenyl, 2,4,6-Trimethylphenyl, Phenoxy, Phenylthio, 2-Chlorphenoxy, 3-Chlorphenoxy, 4-Chlorphenoxy, 2,4-Dichlorphenoxy, Benzyl, 2-Chlorbenzyl, 3-Chlorbenzyl, 4-Chlorbenzyl, 2-Fluorbenzyl, 3-Fluorbenzyl, 4-Fluorbenzyl, 2-Thienyl, 3-Thienyl, 2-Pyridyl, 3-Pyridyl,
 50 4-Pyridyl;



oder

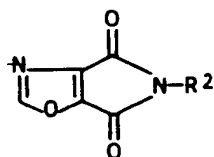


oder

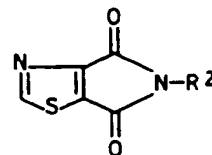


wobei R¹ jeweils die folgende Bedeutung hat:

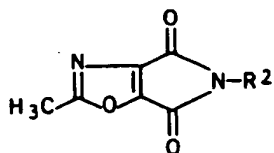
Wasserstoff, Fluor, Chlor, Cyano, Methyl, Ethyl, Propyl, 1-Methylethyl, Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl, 1,1-Dimethylethyl, Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 2,2-Dimethylpropyl, cyclo-Propyl, cyclo-Butyl, cyclo-Pentyl, cyclo-Hexyl, cyclo-Heptyl, cyclo-Octyl, 1-Methyl-cyclo-Propyl, cyclo-Propyl-methyl, 1-(cyclo-Propyl)-ethyl, Chlormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Trifluormethyl, Pentafluorethyl, Difluormethyl, 1-Chlorethyl, 2-Chlorethyl, 1-Methyl-1-chlorethyl, 1-Methyl-2-chlorethyl, Methoxymethyl, 1-Methylmethoxymethyl, 1-Methyl-2-methoxyethyl, 1-Methylethoxymethyl, Ethoxymethyl, Ethenyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, 1-Methylethenyl, 1-Ethylethenyl, 2-Phenylethenyl, 1-Butenyl, 2-Butenyl, 3-Butenyl, 1-Methyl-1-propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 2-Methyl-2-propenyl, 2-Propinyl, Methoxy, Ethoxy, Propoxy, 1-Methylethoxy, Butoxy, 1-Methylpropoxy, 1,1-Dimethylethoxy, Methylthio, Ethylthio, Chlordifluormethoxy, Trifluor-methoxy, Trichlormethylthio, Phenyl, 2-Fluorphenyl, 3-Fluorphenyl, 4-Fluorphenyl, 2-Chlorphenyl, 3-Chlorphenyl, 4-Chlorphenyl, 2-Methylphenyl, 3-Methylphenyl, 4-Methylphenyl, 2-Trifluormethylphenyl, 3-Trifluormethylphenyl, 4-Trifluormethylphenyl, 2-Methoxyphenyl, 3-Methoxyphenyl, 4-Methoxyphenyl, 2,4-Dichlorphenyl, 2,4,6-Trimethylphenyl, Phenoxy, Phenylthio, 2-Chlorphenoxy, 3-Chlorphenoxy, 4-Chlorphenoxy, 2,4-Dichlorphenoxy, Benzyl, 2-Chlorbenzyl, 3-Chlorbenzyl, 4-Chlorbenzyl, 2-Fluorbenzyl, 3-Fluorbenzyl, 4-Fluorbenzyl, 2-Thienyl, 3-Thienyl, 2-Pyridyl, 3-Pyridyl, 4-Pyridyl;



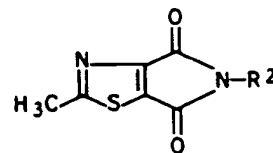
bzw.



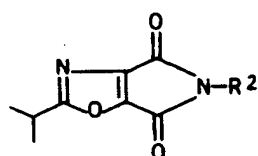
oder



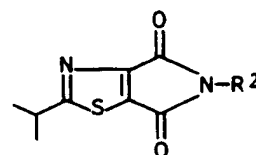
bzw.



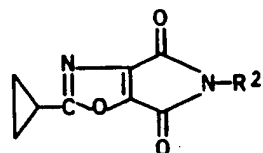
oder



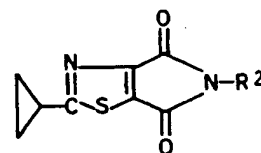
bzw.



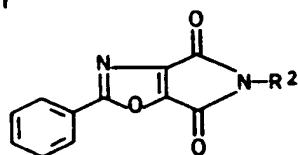
oder



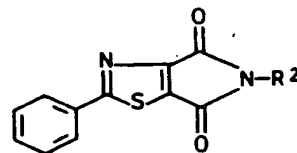
bzw.



oder



bzw.



wobei R² jeweils die folgende Bedeutung hat:

Methyl, Ethyl, Propyl, 1-Methylethyl, Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl, 1,1-Dimethylethyl, Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 2,2-Dimethylpropyl, 1-Ethylpropyl, Hexyl, 1-Methylpentyl, 2-Methylpentyl, 3-Methylpentyl, 4-Methylpentyl, 1,1-Dimethylbutyl, 1,2-Dimethylbutyl, 1,3-Dimethylbutyl, 2,2-Dimethylbutyl, 2,3-Dimethylbutyl, 3,3-Dimethylbutyl, 1-Ethylbutyl, 2-Ethylbutyl, 1,1,2-Trimethylpropyl, 1,2,2-Trimethylpropyl, 1-Ethyl-1-methylpropyl, 1-Ethyl-2-methylpropyl, cyclo-Propyl, cyclo-Butyl, cyclo-Pentyl, cyclo-Hexyl, cyclo-Heptyl, cyclo-Octyl, 1-Methyl-cyclo-Propyl, cyclo-Propyl-methyl, 1-(cyclo-Propyl)-ethyl, 1-Methylcyclohexyl, 1-Ethylcyclohexyl, Cyclohexylmethyl, 2-Propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 1,1-Dimethyl-2-propenyl, 2-Propinyl, 1-Methyl-2-propinyl, 1,1-Dimethylpropinyl, Phenylmethyl, 1-Methylphenylmethyl, 1,1-Dimethylphenylmethyl, 2-Phenylethyl, 2-Methylthioethyl, 1-Methyl-2-methylthioethyl, 1,1-Dimethyl-2-methylthioethyl, 3-Methylthiopropyl, 2-Fluorethyl, 2-Fluor-1-methylthioethyl, 1,1-Dimethyl-2-fluorethyl, 2-Chlorethyl, 2-Chlor-1-methylethyl, 2-Chlor-1,1-Dimethylethyl, 2-Methoxyethyl, 2-Methoxy-1-methylethyl, 1,1-Dimethyl-2-methoxyethyl, 3-Methoxypropyl, 2-Cyanoethyl, 2-Cyano-1-methylethyl, 2-Cyano-1,1-dimethylethyl, Dimethylamino, Diethylamino, Morpholino, Piperidino, Phenyl, 2-Methylphenyl, 3-Methylphenyl, 4-Methylphenyl, 2-Ethylphenyl, 3-Ethylphenyl, 4-Ethylphenyl, 2,3-Dimethylphenyl, 2,4-Dimethylphenyl, 2,5-Dimethylphenyl, 2,6-Dimethylphenyl, 3,4-Dimethylphenyl, 3,5-Dimethylphenyl, 2,3,4-Trimethylphenyl, 2,3,5-Trimethylphenyl, 2,4,5-Trimethylphenyl, 2,4,6-Trimethylphenyl, 3,4,5-Trimethylphenyl, 2-Trifluormethylphenyl, 3-Trifluormethylphenyl, 4-Trifluormethylphenyl, 2-Fluorphenyl, 3-Fluorphenyl, 4-Fluorphenyl, 2-Chlorphenyl, 3-Chlorphenyl, 4-Chlorphenyl, 2,3-Difluorphenyl, 2,4-Difluorphenyl, 2,5-Difluorphenyl, 2,6-Difluorphenyl, 2,3-Dichlorphenyl, 2,4-Dichlorphenyl, 2,5-Dichlorphenyl, 2,6-Dichlorphenyl, 2,3,4-Trichlorphenyl, 2,3,5-Trichlorphenyl, 2,4,6-Trichlorphenyl, 3,4,5-Trichlorphenyl, 2-Cyanophenyl, 3-Cy-

anophenyl, 4-Cyanophenyl, 2-Methoxyphenyl, 3-Methoxyphenyl, 4-Methoxyphenyl, 2,3-Dimethoxyphenyl, 2,4-Dimethoxyphenyl, 2,5-Dimethoxyphenyl, 2,6-Dimethoxyphenyl, 3,4-Dimethoxyphenyl, 3,5-Dimethoxyphenyl, 3,4,5-Dimethoxyphenyl, 2-Trifluormethoxyphenyl, 3-Trifluormethoxyphenyl, 4-Trifluormethoxyphenyl, 2-Nitrophenyl, 3-Nitrophenyl, 4-Nitrophenyl, 2,3-Dinitrophenyl, 2,4-Dinitrophenyl, 2,5-Dinitrophenyl, 2,6-Dinitrophenyl, 3,4-Dinitrophenyl, 3,5-Dinitrophenyl, 1-Naphthyl, 2-Naphthyl, 3-Tetrahydrofuryl, 4-Tetrahydro-
 5 pyranyl, 2-Thiazolyl.

Die vorstehend genannten Restdefinitionen für R¹ und R² können darüberhinaus in den Oxazol- bzw. Thiazol-4,5-dicarbonsäureimiden zu anderen als den aufgeführten Kombinationen miteinander kombiniert werden.

10 Als Salze der Verbindungen der Formeln Ia, Ib und Ic kommen landwirtschaftlich brauchbare Salze, beispielsweise Alkalimetallsalze, wie das Kalium- oder Natriumsalz, Erdalkalimetallsalze, wie das Calcium-, Magnesium- oder Bariumsalz, Mangan-, Kupfer-, Zink- oder Eisensalze sowie Ammonium, Phosphonium-, Sulfonium- oder Sulfoxoniumsalze, beispielsweise Ammoniumsalze, Tetraalkylammoniumsalze, Benzyltrialkylammoniumsalze, Trialkylsulfoniumsalze oder Trialkylsulfoxoniumsalze in Betracht.

15 Die erfindungsgemäßen herbiziden Verbindungen bzw. die sie enthaltenden Mittel können beispielsweise in Form von direkt versprühbaren Lösungen, Pulvern, Suspensionen, auch hochprozentigen wäßrigen, öligen oder sonstigen Suspensionen oder Dispersionen, Emulsionen, Öldispersionen, Pasten, Stäubemitteln, Streumitteln oder Granulaten durch Versprühen, Vernebeln, Verstäuben, Verstreuen oder Gießen angewendet werden. Die Anwendungsformen richten sich nach den Verwendungszwecken; sie sollten in jedem Fall
 20 möglichst die feinste Verteilung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe gewährleisten.

Die Verbindungen eignen sich allgemein zur Herstellung von direkt versprühbaren Lösungen, Emulsionen, Pasten oder Öldispersionen. Als inerte Zusatzstoffe kommen Mineralölfractionen von mittlerem bis hohem Siedepunkt, wie Kerosin oder Dieselöl, ferner Kohlenteeröle sowie Öle pflanzlichen oder tierischen Ursprungs, aliphatische, cyclische und aromatische Kohlenwasserstoffe, z.B. Toluol, Xylol, Paraffin, Tetra-
 25 ydronaphthalin, alkylierte Naphthaline oder deren Derivate, Methanol, Ethanol, Propanol, Butanol, Cyclohexanol, Cyclohexanon, Chlorbenzol, Isophoron oder stark polare Lösungsmittel wie N,N-Dimethylformamid, Dimethylsulfoxid, N-Methylpyrrolidon oder Wasser in Betracht.

Wäßrige Anwendungsformen können aus Emulsionskonzentraten, Dispersionen, Pasten, netzbaren Pulvern oder wasserdispergierbaren Granulaten durch Zusatz von Wasser bereitete werden. Zur Herstellung
 30 von Emulsionen, Pasten oder Öldispersionen können die Substrate als solche oder in einem Öl oder Lösungsmittel gelöst, mittels Netz-, Haft-, Dispergier- oder Emulgiermittel in Wasser homogenisiert werden. Es können aber auch aus wirksamer Substanz, Netz-, Haft-, Dispergier- oder Emulgiermittel und eventuell Lösungsmittel oder Öl bestehende Konzentrate hergestellt werden, die zur Verdünnung mit Wasser geeignet sind.

35 Als oberflächenaktive Stoffe kommen die Alkali-, Erdalkali-, Ammoniumsalze von aromatischen Sulfonsäuren, z.B. Lignin-, Phenol-, Naphthalin- und Dibutyl-naphthalinsulfonsäure, sowie von Fettsäuren, Alkyl- und Alkylarylsulfonaten, Alkyl-, Laurylether- und Fettalkoholsulfaten, sowie Salze sulfatierter Hexa-, Hepta- und Octadecanolen, sowie von Fettalkoholglykolether, Kondensationsprodukte von sulfoniertem Naphthalin und seiner Derivate mit Formaldehyd, Kondensationsprodukte des Naphthalins bzw. der Naphthalinsulfon-
 40 säuren mit Phenol und Formaldehyd, Polyoxyethylenoctylphenolether, ethoxyliertes Isooctyl-, Octyl- oder Nonylphenol, Alkylphenol-, Tributylphenylpolyglykolether, Alkylarylpolyetheralkohole, Isotridecylalkohol, Fettalkoholethylenoxid-Kondensate, ethoxyliertes Rizinusöl, Polyoxyethylenalkylether oder Polyoxypropylen, Laurylalkoholpolyglykoletheracetat, Sorbitester, Lignin-Sulfitablaugen oder Methylcellulose in Betracht.

Pulver-, Streu- und Stäubemittel können durch Mischen oder gemeinsames Vermahlen der wirksamen
 45 Substanzen mit einem festen Trägerstoff hergestellt werden.

Granulate, z.B. Umhüllungs-, Imprägnierungs- und Homogengranulate können durch Bindung der Wirkstoffe an feste Trägerstoffe hergestellt werden. Feste Trägerstoffe sind Mineralerden wie Silicagel, Kieselsäuren, Silikate, Talkum, Kaolin, Kalkstein, Kalk, Kreide, Bolus, Löß, Ton, Dolomit, Diatomeenerde, Calcium- und Magnesiumsulfat, Magnesiumoxid, gemahlene Kunststoffe, Düngemittel, wie Ammoniumsulfat,
 50 Ammoniumphosphat, Ammoniumnitrat, Harnstoffe und pflanzliche Produkte, wie Getreidemehl, Baumrinden-, Holz- und Nußschalenmehl, Cellulosepulver oder andere feste Trägerstoffe.

Die Formulierungen enthalten zwischen 0,1 und 95 Gew.-%, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 Gew.-%, Wirkstoff. Die Wirkstoffe werden dabei in einer Reinheit von 90 % bis 100 %, vorzugsweise 95 % bis 100 % (nach NMR-Spektrum) eingesetzt.

55 Die erfindungsgemäßen Verbindungen I können beispielsweise wie folgt formuliert werden:

I. Man vermischt 90 Gewichtsteile der Verbindung Nr. 1.001 mit 10 Gewichtsteilen N-Methyl- α -pyrrolidon und erhält eine Lösung, die zur Anwendung in Form kleinster Tropfen geeignet ist.

II. 20 Gewichtsteile der Verbindung Nr. 4.003 werden in einer Mischung gelöst, die aus 80 Gewichtstei-

len Xylol, 10 Gewichtsteilen des Anlagerungsproduktes von 8 bis 10 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ölsäure-N-monoethanolamid, 5 Gewichtsteilen Calciumsalz der Dodecylbenzolsulfonsäure und 5 Gewichtsteilen des Anlagerungsproduktes von 40 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ricinusöl besteht. Durch Ausgießen und feines Verteilen der Lösung in 100 000 Gewichtsteilen Wasser erhält man eine wäßrige Dispersion, die 0,02 Gew.% des Wirkstoffs enthält.

III. 20 Gewichtsteile der Verbindung Nr. 1.001 werden in einer Mischung gelöst, die aus 40 Gewichtsteilen Cyclohexanon, 30 Gewichtsteilen Isobutanol, 20 Gewichtsteilen des Anlagerungsproduktes von 7 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Isooctylphenol und 10 Gewichtsteilen des Anlagerungsproduktes von 40 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ricinusöl besteht. Durch Eingießen und feines Verteilen der Lösung in 100 000 Gewichtsteilen Wasser erhält man eine wäßrige Dispersion, die 0,02 Gew.% des Wirkstoffs enthält.

IV. 20 Gewichtsteile des Wirkstoffs Nr. 4.003 werden in einer Mischung gelöst, die aus 25 Gewichtsteilen Cyclohexanon, 65 Gewichtsteilen einer Mineralölfraction vom Siedepunkt 210 bis 280°C und 10 Gewichtsteilen des Anlagerungsproduktes von 40 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ricinusöl besteht. Durch Eingießen und feines Verteilen der Lösung in 100 000 Gewichtsteilen Wasser erhält man eine wäßrige Dispersion, die 0,02 Gew.% des Wirkstoffs enthält.

V. 20 Gewichtsteile des Wirkstoffs Nr. 1.001 werden mit 3 Gewichtsteilen des Natriumsalzes der Diisobutyl-naphthalin- α -sulfonsäure, 17 Gewichtsteilen des Natriumsalzes einer Ligninsulfonsäure aus einer Sulfit-Ablauge und 60 Gewichtsteilen pulverförmigem Kieselsäuregel gut vermischt und in einer Hammermühle vermahlen. Durch feines Verteilen der Mischung in 20 000 Gewichtsteilen Wasser erhält man eine Spritzbrühe, die 0,1 Gew.% des Wirkstoffs enthält.

VI. 3 Gewichtsteile des Wirkstoffs Nr. 1.001 werden mit 97 Gewichtsteilen feinteiligem Kaolin vermischt. Man erhält auf diese Weise ein Stäubemittel, das 3 Gew.% des Wirkstoffs enthält.

VII. 30 Gewichtsteile des Wirkstoffs Nr. 4.003 werden mit einer Mischung aus 92 Gewichtsteilen pulverförmigem Kieselsäuregel und 8 Gewichtsteilen Paraffinöl, das auf die Oberfläche dieses Kieselsäuregels gesprüht wurde, innig vermischt. Man erhält auf diese Weise eine Aufbereitung des Wirkstoffs mit guter Haftfähigkeit.

VIII. 20 Gewichtsteile des Wirkstoffs Nr. 4.003 werden mit 2 Gewichtsteilen Calciumsalz der Dodecylbenzolsulfonsäure, 8 Gewichtsteilen Fettalkohol-polyglykolether, 2 Gewichtsteilen Natrium Salz eines Phenol-Harnstoff-Formaldehyd-Kondensates und 68 Gewichtsteilen eines paraffinischen Mineralöls innig vermischt. Man erhält eine stabile ölige Dispersion.

Die Applikation der herbiziden und wachstumsregulierenden Mittel bzw. der Wirkstoffe kann im Vorauf- oder im Nachaufverfahren erfolgen. Sind die Wirkstoffe für gewisse Kulturpflanzen weniger verträglich, so können Ausbringungstechniken angewandt werden, bei welchen die herbiziden Mittel mit Hilfe der Spritzgeräte so gespritzt werden, daß die Blätter der empfindlichen Kulturpflanzen nach Möglichkeit nicht getroffen werden, während die Wirkstoffe auf die Blätter darunter wachsender unerwünschter Pflanzen oder die unbedeckte Bodenfläche gelangen (post-directed, lay-by).

Die Aufwandmengen an Wirkstoff bei Anwendung als Herbizide betragen je nach Bekämpfungsziel, Jahreszeit, Zielpflanzen und Wachstumsstadium 0,001 bis 3, vorzugsweise 0,01 bis 2 kg/ha aktive Substanz (a.S.).

In Anbetracht des erfaßbaren Wirkungsspektrums zur Unkrautbekämpfung, der Verträglichkeit für Kulturpflanzen oder der erwünschten Beeinflussung des Wachstums derselben sowie angesichts der Vielfalt der Applikationsmethoden können die erfindungsgemäßen Verbindungen in einer großen Zahl von Kulturpflanzen eingesetzt werden. In Betracht kommen beispielsweise folgende Kulturen:

	Botanischer Name	Deutscher Name
	<i>Allium cepa</i>	Küchenzwiebel
	<i>Ananas comosus</i>	Ananas
5	<i>Arachis hypogaea</i>	Erdnuß
	<i>Asparagus officinalis</i>	Spargel
	<i>Beta vulgaris</i> spp. <i>altissima</i>	Zuckerrübe
	<i>Beta vulgaris</i> spp. <i>rapa</i>	Futterrübe
10	<i>Brassica napus</i> var. <i>napus</i>	Raps
	<i>Brassica napus</i> var. <i>napobrassica</i>	Kohlrübe
	<i>Brassica rapa</i> var. <i>silvestris</i>	Rübsen
	<i>Camellia sinensis</i>	Teestrauch
15	<i>Carthamus tinctorius</i>	Saflor - Färberdistel
	<i>Carya illinoensis</i>	Pekannußbaum
	<i>Citrus limon</i>	Zitrone
	<i>Citrus sinensis</i>	Apfelsine, Orange
20		
25		
30		
35		
40		
45		
50		
55		

	Botanischer Name	Deutscher Name
	<i>Coffea arabica</i> (<i>Coffea canephora</i> , <i>Coffea liberica</i>)	Kaffee
5	<i>Cucumis sativus</i>	Gurke
	<i>Cynodon dactylon</i>	Bermudagrass
	<i>Daucus carota</i>	Möhre
	<i>Elaeis guineensis</i>	Ölpalme
10	<i>Fragaria vesca</i>	Erdbeere
	<i>Glycine max</i>	Sojabohne
	<i>Gossypium hirsutum</i> (<i>Gossypium arboreum</i> , <i>Gossypium herbaceum</i> , <i>Gossypium vitifolium</i>)	Baumwolle
15	<i>Helianthus annuus</i>	Sonnenblume
	<i>Hevea brasiliensis</i>	Parakautschukbaum
	<i>Hordeum vulgare</i>	Gerste
	<i>Humulus lupulus</i>	Hopfen
	<i>Ipomoea batatas</i>	Süßkartoffeln
20	<i>Juglans regia</i>	Walnußbaum
	<i>Lens culinaris</i>	Linse
	<i>Linum usitatissimum</i>	Faserlein
	<i>Lycopersicon lycopersicum</i>	Tomate
25	<i>Malus</i> spp.	Apfel
	<i>Manihot esculenta</i>	Maniok
	<i>Medicago sativa</i>	Luzerne
	<i>Musa</i> spp.	Obst- und Mehlbanane
30	<i>Nicotiana tabacum</i> (<i>N. rustica</i>)	Tabak
	<i>Olea europaea</i>	Ölbaum
	<i>Oryza sativa</i>	Reis
	<i>Phaseolus lunatus</i>	Mondbohne
	<i>Phaseolus vulgaris</i>	Buschbohne
35	<i>Picea abies</i>	Rotfichte
	<i>Pinus</i> spp.	Kiefer
	<i>Pisum sativum</i>	Gartenerbse
	<i>Prunus avium</i>	Süßkirsche
40	<i>Prunus dulcis</i>	Mandelbaum
	<i>Prunus persica</i>	Pfirsich
	<i>Pyrus communis</i>	Birne
	<i>Ribes sylvestre</i>	Rote Johannisbeere
45	<i>Ricinus communis</i>	Rizinus
	<i>Saccharum officinarum</i>	Zuckerrohr
	<i>Secale cereale</i>	Roggen
	<i>Solanum tuberosum</i>	Kartoffel
50	<i>Sorghum bicolor</i> (<i>s. vulgare</i>)	Mohrenhirse
	<i>Theobroma cacao</i>	Kakaobaum

Botanischer Name	Deutscher Name
Trifolium pratense	Rotklee
Triticum aestivum	Weizen
Triticum durum	Hartweizen
Vicia faba	Pferdebohnen
Vitis vinifera	Weinrebe
Zea mays	Mais

Zur Verbreiterung des Wirkungsspektrums und zur Erzielung synergistischer Effekte können die Verbindungen der Formel I sowohl untereinander als auch mit Vertretern anderer herbizider oder wachstumsregulierender Wirkstoffgruppen gemischt und gemeinsam ausgebracht werden. Beispielsweise kommen als Mischungspartner Diazin, 4H-3,1-Benzoxazinderivate, Benzothiadiazinone, 2,6-Dinitroaniline, N-Phenylcarbamate, Thiocarbamate, Halogen-carbonsäuren, Triazine, Amide, Harnstoffe, Diphenylether, Triazinone, Uracile, Benzofuranderivate, Cyclohexan-1,3-dionderivate, Chinolincarbonsäurederivate, Sulfonylharnstoffderivate, (Hetero)-aryloxy-phenoxypropionsäuren, deren Salze, Ester und Amide und andere in Betracht.

Außerdem kann es von Nutzen sein, die Verbindungen I allein oder in Kombination mit anderen Herbiziden auch noch mit weiteren Pflanzenschutzmitteln gemischt gemeinsam auszubringen, beispielsweise mit Mitteln zur Bekämpfung von Schädlingen oder phytopathogenen Pilzen bzw. Bakterien. Von Interesse ist ferner die Mischbarkeit mit Mineralsalzlösungen, welche zur Behebung von Ernährungs- und Spurenelementmängeln eingesetzt werden. Es können auch nichtphytotoxische Öle und Ölkonzentrate zugesetzt werden.

Die folgenden Beispiele erläutern die Herstellung der Verbindungen I:

1. Herstellung der Verbindungen Ia und Ib

N-tert.-Butyl-3-isopropyl-isoxazol-4,5-dicarboximid

Zu 5,1 g (20 mmol) 5-tert.-Butylaminocarbonyl-3-isopropyl-isoxazol-4-carbonsäure in 200 ml Dichlormethan tropfte man bei -5 °C nacheinander 7,5 g (74,1 mmol) Methylmorpholin, 2,4 g (20 mmol) Dimethylaminopyridin und 17,4 g einer 50 %igen Lösung von Propanphosphonsäureanhydrid (27,3 mmol) in Dichlormethan und erhitze anschließend 6 h unter Rückfluß. Man zog das Solvens im Vakuum ab, nahm den Rückstand in 300 ml Ethylacetat auf und extrahierte zweimal mit gesättigter Natriumhydrogencarbonatlösung sowie je einmal mit 5 %iger Zitronensäurelösung, gesättigter Natriumcarbonatlösung und gesättigter Natriumchloridlösung. Die organische Phase wurde getrocknet und das Solvens im Vakuum abgezogen. Man erhielt 4,1 g (87 %) N-tert.-Butyl-3-isopropyl-isoxazol-4,5-dicarboximid als Feststoff vom Fp. 60-62 °C (Beispiel Nr. 1.003)

8,5 g (45,3 mmol) Chlormaleinsäure-tert. butylimid in 100 ml trockenem Toluol versetzte man bei 0 °C mit 5,5 g (45,3 mmol) 2-Methyl-propyl-hydroxamylchlorid in 100 ml Toluol. Anschließend tropfte man bei 0 °C 9,6 g (94,9 mmol) Triethylamin zu und rührte 12 h bei Raumtemperatur. Man filtrierte, extrahierte das Filtrat mit 10 %iger HCl, trocknete die organische Phase über Magnesiumsulfat und zog das Solvens im Vakuum ab. Man erhielt 7,9 g (74 %) N-tert.-Butyl-3-isopropyl-isoxazol-4,5-dicarboximid (Physikalische Daten s.o.)

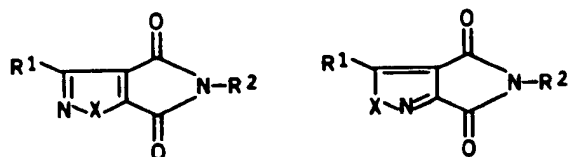
N-tert.-Butyl-3-isopropyl-isothiazol-4,5-dicarboximid

Zu 5,4 g (20 mmol) 5-tert.-Butylaminocarbonyl-3-isopropyl-isothiazol-4-carbonsäure in 200 ml Dichlormethan tropfte man bei -5 °C nacheinander 7,5 g (74,1 mmol) Methylmorpholin, 2,4 g (20 mmol) Dimethylaminopyridin und 17,4 g einer 50 %igen Lösung von Propanphosphonsäureanhydrid (27,3 mmol) in Dichlormethan und erhitze anschließend 6 h unter Rückfluß. Die Aufarbeitung erfolgte wie voranstehend für Beispiel Nr. 1.003 angegeben. Man erhielt 4,8 g (95 %) N-tert.-Butyl-3-isopropyl-isothiazol-4,5-dicarboximid als Feststoff vom Fp. 52-53 °C (Beispiel Nr. 3.001).

N-tert.-Butyl-5-methyl-isoxazol-3,4-dicarboximid

Zu 3,8 g (16,8 mmol) 3-tert.-Butylaminocarbonyl-5-methyl-isoxazol-4-carbonsäure in 150 ml Dichlormethan tropfte man bei -5° C nacheinander 6,3 g (62,2 mmol) Methylmorpholin, 2,4 g (20 mmol) Dimethylaminopyridin und 14,6 g einer 50 %igen Lösung von Propanphosphonsäureanhydrid (23 mmol) in Dichlormethan und erhitze anschließend 6 h unter Rückfluß. Die Aufarbeitung erfolgte wie voranstehend angegeben.
 5 Man erhielt 3,2 g (91 %) N-tert.-Butyl-5-methyl-isoxazol-3,4-dicarboximid als Feststoff vom Fp. 48-50° C (Beispiel Nr. 2.001).

Analog können darüber hinaus beispielsweise weitere Verbindungen hergestellt werden mit den allgemeinen Strukturen



wobei X für Sauerstoff oder Schwefel, und beispielsweise R¹ für einen Rest aus der Gruppe Q₁ bis Q₁₀₄, R² für einen Rest aus der Gruppe M₁ bis M₁₄₅ stehen und die Reste X, Q und M beliebig kombiniert werden können.

R¹ und R² können beispielsweise die folgenden Reste bedeuten:

Verb. R ¹		Verb. R ¹	
Nr.		Nr.	
5	Q1 H	Q42	1-Methylethoxymethyl
	Q2 F	Q43	Ethoxymethyl
	Q3 Cl	Q44	Ethenyl
	Q4 Methyl	Q45	1-Propenyl
10	Q5 Ethyl	Q46	2-Propenyl
	Q6 Propyl	Q47	1-Methylethenyl
	Q7 1-Methylethyl	Q48	1-Ethylethenyl
	Q8 Butyl	Q49	2-Phenylethenyl
15	Q9 1-Methylpropyl	Q50	1-Butenyl
	Q10 2-Methylpropyl	Q51	2-Butenyl
	Q11 1,1-Dimethylethyl	Q52	3-Butenyl
	Q12 Pentyl	Q53	1-Methyl-1-propenyl
20	Q13 1-Methylbutyl	Q54	1-Methyl-2-propenyl
	Q14 2-Methylbutyl	Q55	2-Methyl-2-propenyl
	Q15 3-Methylbutyl	Q56	2-Propinyl
	Q16 1,1-Dimethylpropyl	Q57	Methoxy
25	Q17 1,2-Dimethylpropyl	Q58	Ethoxy
	Q18 2,2-Dimethylpropyl	Q59	Propoxy
	Q19 cyclo-Propyl	Q60	1-Methylethoxy
	Q20 cyclo-Butyl	Q61	Butoxy
30	Q21 cyclo-Pentyl	Q62	1-Methylpropoxy
	Q22 cyclo-Hexyl	Q63	1,1-Dimethylethoxy
	Q23 cyclo-Heptyl	Q64	Methylthio
	Q24 cyclo-Octyl	Q65	Ethylthio
35	Q25 1-Methyl-cyclo-Propyl	Q66	Chlordifluormethoxy
	Q26 cyclo-Propyl-methyl	Q67	Trifluormethoxy
	Q27 1-(cyclo-Propyl)-ethyl	Q68	Trichlormethylthio
	Q28 Chlormethyl	Q69	Phenyl
40	Q29 Dichlormethyl	Q70	2-Fluorphenyl
	Q30 Trichlormethyl	Q71	3-Fluorphenyl

45

50

55

	Verb. R ¹		Verb. R ¹	
	Nr.		Nr.	
5	Q31	Chlordifluormethyl	Q72	4-Fluorphenyl
	Q32	Trifluormethyl	Q73	2-Chlorphenyl
	Q33	Pentafluorethyl	Q74	3-Chlorphenyl
	Q34	Difluormethyl	Q75	4-Chlorphenyl
10	Q35	1-Chlorethyl	Q76	2-Methylphenyl
	Q36	2-Chlorethyl	Q77	3-Methylphenyl
	Q37	1-Methyl-1-chlorethyl	Q78	4-Methylphenyl
	Q38	1-Methyl-2-chlorethyl	Q79	2-Trifluormethylphenyl
15	Q39	Methoxymethyl	Q80	3-Trifluorphenyl
	Q40	1-Methylmethoxymethyl	Q81	4-Trifluorphenyl
	Q41	1-Methyl-2-methoxyethyl	Q82	2-Methoxyphenyl
	Verb. R ¹		Verb. R ²	
	Nr.		Nr.	
	Q83	3-Methoxyphenyl	M ₁	Methyl
	Q84	4-Methoxyphenyl	M ₂	Ethyl
25	Q85	2,4-Dichlorphenyl	M ₃	Propyl
	Q86	2,4,6-Trimethylphenyl	M ₄	1-Methylethyl
	Q87	Phenoxy	M ₅	Butyl
	Q88	Phenylthio	M ₆	1-Methylpropyl
	Q89	2-Chlorphenoxy	M ₇	2-Methylpropyl
30	Q90	3-Chlorphenoxy	M ₈	1,1-Dimethylethyl
	Q91	4-Chlorphenoxy	M ₉	Pentyl
	Q92	2,4-Dichlorphenoxy	M ₁₀	1-Methylbutyl
	Q93	Benzyl	M ₁₁	2-Methylbutyl
35	Q94	2-Chlorbenzyl	M ₁₂	3-Methylbutyl
	Q95	3-Chlorbenzyl	M ₁₃	1,1-Dimethylpropyl
	Q96	4-Chlorbenzyl	M ₁₄	1,2-Dimethylpropyl
	Q97	2-Fluorbenzyl	M ₁₅	2,2-Dimethylpropyl
40	Q98	3-Fluorbenzyl	M ₁₆	1-Ethylpropyl
	Q99	4-Fluorbenzyl	M ₁₇	Hexyl
	Q100	2-Thienyl	M ₁₈	1-Methylpentyl
	Q101	3-Thienyl	M ₁₉	2-Methylpentyl
	Q102	2-Pyridyl	M ₂₀	3-Methylpentyl
45	Q103	3-Pyridyl	M ₂₁	4-Methylpentyl
	Q104	4-Pyridyl	M ₂₂	1,1-Dimethylbutyl
			M ₂₃	1,2-Dimethylbutyl
			M ₂₄	1,3-Dimethylbutyl
50			M ₂₅	2,2-Dimethylbutyl
			M ₂₆	2,3-Dimethylbutyl

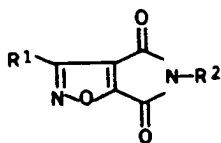
Verb. R ¹ Nr.		Verb. R ² Nr.
5		M27 3,3-Dimethylbutyl
		M28 1-Ethylbutyl
		M29 2-Ethylbutyl
		M30 1,1,2-Trimethylpropyl
10		M31 1,2,2-Trimethylpropyl
		M32 1-Ethyl-1-methylpropyl
		M33 1-Ethyl-2-methylpropyl
		M34 cyclo-Propyl
		M35 cyclo-Butyl
15		M36 cyclo-Pentyl
		M37 cyclo-Hexyl
		M38 cyclo-Heptyl
		M39 cyclo-Octyl
20		M40 1-Methyl-cyclo-Propyl
Verb. R ² Nr.		Verb. R ² Nr.
25	M41 cyclo-Propyl-methyl	M80 4-Methylphenyl
	M42 1-(cyclo-Propyl)-ethyl	M81 2-Ethylphenyl
	M43 1-Methylcyclohexyl	M82 3-Ethylphenyl
	M44 1-Ethylcyclohexyl	M83 4-Ethylphenyl
30	M45 Cyclohexylmethyl	M84 2,3-Dimethylphenyl
	M46 2-Propenyl	M85 2,4-Dimethylphenyl
	M47 1-Methyl-2-propenyl	M86 2,5-Dimethylphenyl
	M48 1,1-Dimethyl-2-propenyl	M87 2,6-Dimethylphenyl
	M49 2-Propinyl	M88 3,4-Dimethylphenyl
35	M50 1-Methyl-2-propinyl	M89 3,5-Dimethylphenyl
	M51 1,1-Dimethylpropinyl	M90 2,3,4-Trimethylphenyl
	M52 Phenylmethyl	M91 2,3,5-Trimethylphenyl
	M53 1-Methylphenylmethyl	M92 2,4,5-Trimethylphenyl
40	M54 1,1-Dimethylphenylmethyl	M93 2,4,6-Trimethylphenyl
	M55 2-Phenylethyl	M94 3,4,5-Trimethylphenyl
	M56 2-Methylthioethyl	M95 2-Trifluormethylphenyl
	M57 1-Methyl-2-methylthioethyl	M96 3-Trifluormethylphenyl
	M58 1,1-Dimethyl-2-methylthioethyl	M97 4-Trifluormethylphenyl
45	M59 3-Methylthiopropyl	M98 2-Fluorphenyl
	M60 2-Fluorethyl	M99 3-Fluorphenyl
	M61 2-Fluor-1-methylethyl	M88 3,4-Dimethylphenyl
	M62 1,1-Dimethyl-2-fluorethyl	M89 3,5-Dimethylphenyl
50	M63 2-Chlorethyl	M90 2,3,4-Trimethylphenyl

	Verb. R ² Nr.	Verb. R ² Nr.
5	M ₆₄ 2-Chlor-1-methylethyl M ₆₅ 2-Chlor-1,1-dimethylethyl M ₆₆ 2-Methoxyethyl M ₆₇ 2-Methoxy-1-methylethyl	M ₉₁ 2,3,5-Trimethylphenyl M ₉₂ 2,4,5-Trimethylphenyl M ₉₃ 2,4,6-Trimethylphenyl M ₉₄ 3,4,5-Trimethylphenyl
10	M ₆₈ 1,1-Dimethyl-2-methoxyethyl M ₆₉ 3-Methoxypropyl M ₇₀ 2-Cyanoethyl M ₇₁ 2-Cyano-1-methylethyl M ₇₂ 2-Cyano-1,1-dimethylethyl	M ₉₅ 2-Trifluormethylphenyl M ₉₆ 3-Trifluormethylphenyl M ₉₇ 4-Trifluormethylphenyl M ₉₈ 2-Fluorphenyl M ₉₉ 3-Fluorphenyl
15	M ₇₃ Dimethylamino M ₇₄ Diethylamino M ₇₅ Morpholino M ₇₆ Piperidino	M ₁₀₀ 4-Fluorphenyl M ₁₀₁ 2-Chlorphenyl M ₁₀₂ 3-Chlorphenyl M ₁₀₃ 4-Chlorphenyl
20	M ₇₇ Phenyl M ₇₈ 2-Methylphenyl M ₇₉ 3-Methylphenyl	M ₁₀₄ 2,3-Difluorphenyl M ₁₀₅ 2,4-Difluorphenyl M ₁₀₆ 2,5-Difluorphenyl
25	Verb. R ² Nr.	
30	M ₁₀₇ 2,6-Difluorphenyl M ₁₀₈ 2,3-Dichlorphenyl M ₁₀₉ 2,4-Dichlorphenyl M ₁₁₀ 2,5-Dichlorphenyl M ₁₁₁ 2,6-Dichlorphenyl M ₁₁₂ 2,3,4-Trichlorphenyl	
35	M ₁₁₃ 2,3,5-Trichlorphenyl M ₁₁₄ 2,4,6-Trichlorphenyl M ₁₁₅ 3,4,5-Trichlorphenyl M ₁₁₆ 2-Cyanophenyl M ₁₁₇ 3-Cyanophenyl	
40	M ₁₁₈ 4-Cyanophenyl M ₁₁₉ 2-Methoxyphenyl M ₁₂₀ 3-Methoxyphenyl M ₁₂₁ 4-Methoxyphenyl	
45	M ₁₂₂ 2,3-Dimethoxyphenyl M ₁₂₃ 2,4-Dimethoxyphenyl M ₁₂₄ 2,5-Dimethoxyphenyl M ₁₂₅ 2,6-Dimethoxyphenyl	
50	M ₁₂₆ 3,4-Dimethoxyphenyl M ₁₂₇ 3,5-Dimethoxyphenyl	

Verb. R²
Nr. —

M₁₂₈ 3,4,5-Trimethoxyphenyl
M₁₂₉ 2-Trifluormethoxyphenyl
M₁₃₀ 3-Trifluormethoxyphenyl
M₁₃₁ 4-Trifluormethoxyphenyl
M₁₃₂ 2-Nitrophenyl
M₁₃₃ 3-Nitrophenyl
M₁₃₄ 4-Nitrophenyl
M₁₃₅ 2,3-Dinitrophenyl
M₁₃₆ 2,4-Dinitrophenyl
M₁₃₇ 2,5-Dinitrophenyl
M₁₃₈ 2,6-Dinitrophenyl
M₁₃₉ 3,4-Dinitrophenyl
M₁₄₀ 3,5-Dinitrophenyl
M₁₄₁ 1-Naphthyl
M₁₄₂ 2-Naphthyl
M₁₄₃ 3-Tetrahydrofuryl
M₁₄₄ 4-Tetrahydropyranyl
M₁₄₅ 2-Thiazolyl

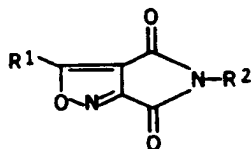
Tabelle 1



Bsp. Nr.	R ¹	R ²	physik. Daten
			Fp.[°C], 1H-NMR (250 MHz, CDCl ₃) [δ in ppm]
1.001	Methyl	tert.-Butyl	48-50
1.002	Ethyl	cyclo-Propyl	58-60
1.003	iso-Propyl	tert.-Butyl	60-62
1.004	n-Propyl	tert.-Butyl	1.00(t;3H), 1.63(s;9H), 1.84(m;2H), 2.76(t;2H)
1.005	cyclo-Propyl	tert.-Butyl	35-38
1.006	iso-Propyl	cyclo-Propyl	0.82-1.10(m;4H), 3.24(sept; 1H)

Bsp. Nr.	R ¹	R ²	physik. Daten
			Fp.[°C], ¹ H-NMR (250 MHz, CDCl ₃) [δ in ppm]
1.007	CH ₂ =C(C ₂ H ₅)-	cyclo-Propyl	95-96
1.008	CH ₃ -CH(Cl)-	cyclo-Propyl	0.90-1.08(m;4H), 1.97(d;3H), 2.62(m;1H), 5.20(q;1H)
1.009	cyclo-Propyl	cyclo-Propyl	89-90
1.010	iso-Propyl	4-Chlorphenyl	80-82

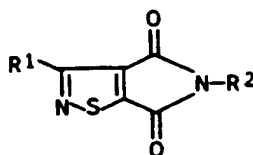
Tabelle 2



Bsp. Nr.	R ¹	R ²	physik. Daten
			Fp.[°C], ¹ H-NMR (250 MHz, CDCl ₃) [δ in ppm]
2.001	Methyl	tert.-Butyl	48-50
2.002	n-Propyl	tert.-Butyl	48-49
2.003	iso-Propyl	tert.-Butyl	35-36
2.004	cyclo-Propyl	cyclo-Propyl-methyl	42-46
2.005	cyclo-Propyl	Benzyl	72-77
2.006	cyclo-Propyl	-CH ₂ -CH ₂ -O-CH ₃	1.00-1.45 (m; 4 H); 2.32 (m; 1H), 3.34 (s; 3H), 3.60 (t; 2H) 3.84 (t; 2H)
2.007	Methyl	cyclo-Butyl	55-60
2.008	Methyl	-C(CH ₃) ₂ -C ₂ H ₅	0.86 (t; 3H), 1.63 (s; 6H), 1.97 (q; 2H), 2.66 (s; 3H)
2.009	Methyl	-CH ₂ -C(CH ₃) ₃	84-91

Bsp. Nr.	R ¹	R ²	physik. Daten
			Fp. [°C], ¹ H-NMR (250 MHz, CDCl ₃) [δ in ppm]
2.010	Methyl	sek.-Butyl	0,88 (t; 3H), 1,34 (d; 3H) 1,65-2.10 (m; 2H) 2,68 (s; 3H) 4,20 (m; 1H)
2.011	Methyl	cyclo-Pentyl	71-78
2.012	iso-Propyl	cyclo-Propyl	70-73

Tabelle 3



Bsp. Nr.	R ¹	R ²	physik. Daten
			Fp. [°C]
3.001	iso-Propyl	tert.-Butyl	52- 53
3.002	iso-Propyl	4-Cl-Phenyl	99-100
3.003	Ethyl	4-Cl-Phenyl	121-123
3.004	Phenyl	4-Cl-Phenyl	146-147

2. Herstellung von Vorprodukten für die Verbindungen Ic.

4(5)-t-Butylamino-carbonyl-2-methylthiazol-5(4)-carbonsäure
4(5)-Ethoxycarbonyl-2-methylthiazol-5(4)-carbonsäure

Eine Lösung von 51.8 g (0.213 mol) 2-Methylthiazol-4,5-dicarbonsäure-diethylester in 300 ml Ethanol wurde bei 0 °C tropfenweise mit einer Lösung von 8.5 g (0.213 mol) Natriumhydroxid in 100 ml Wasser versetzt. Man ließ 12 Stunden bei Raumtemperatur rühren, entfernte dann das Lösungsmittel im Vakuum, nahm den Rückstand in 100 ml Ether und 200 ml Wasser auf, trennte die Phasen und säuerte die wäßrige Phase mit konz. HCl auf pH 1 an. Das ölig ausfallende Produkt wurde durch Extraktion mit CH₂Cl₂ isoliert. Ausbeute: 34.8 g (76 %) als 3:2-Isomerengemisch.

4-Ethoxycarbonyl-2-methylthiazol-5-carbonsäure (Hauptkomponente)

¹H-NMR (CDCl₃, 250 MHz) δ = 1.50 (t, J = 7 Hz; 3 H), 2.80 (s; 3 H), 4.62 (q, J = 7 Hz; 2 H), 13.50 (s, 1 H).

5-Ethoxycarbonyl-2-methylthiazol-4-carbonsäure (Nebenkomponente)

¹H-NMR (CDCl₃, 250 MHz) δ = 1.52 (t, J = 7 Hz; 3 H), 2.82 (s; 3 H), 4.53 (q, 2 H), 13.50 (s, 1 H).

4(5)-t-Butylaminocarbonyl-2-methylthiazol-5(4)-carbonsäureethyl-ester

Eine Lösung von 8 g (37.2 mmol) 4(5)-Ethoxycarbonyl-2-methylthiazol-5(4)-carbonsäure in 50 ml Toluol wurde mit 3.20 g (40.9 mmol) Pyridin versetzt. Man rührte 30 Minuten nach und tropfte dann 4.70 g (39.8 mmol) Thionylchlorid zu. Die erhaltene Mischung wurde 2 h bei 60 °C gerührt, dann auf 0 °C gekühlt und mit 8 g (110 mmol) t-Butylamin versetzt. Man rührte 12 h bei Raumtemperatur nach, entfernte das Lösungsmittel im Vakuum und nahm den Rückstand mit 100 ml Ether und 50 ml Wasser auf. Man extrahierte nochmals mit 100 ml Ether, trocknete die vereinten Extrakte und entfernte das Lösungsmittel. Als Rückstand bleiben 9.70 g (97 %) Produkt als Kristallbrei. (3:2-Isomerengemisch).

5-t-Butylaminocarbonyl-2-methylthiazol-4-carbonsäureethylester (Hauptkomponente)

¹H-NMR (CDCl₃, 250 MHz) δ = 1.45 (t, 3 H), 1.45 (s; 3 H), 2.71 (s; 3 H), 4.50 (q, J = 7 Hz; 2 H), 9.95 (s; 1 H).

4-t-Butylaminocarbonyl-2-methylthiazol-5-carbonsäureethylester (Nebenkomponente)

¹H-NMR (CDCl₃, 250 MHz) δ = 1.37 (t, 3 H), 1.45 (s; 9 H), 2.71 (s, 3 H), 4.38 (q, 2H), 7.84 (s; 1H).

4(5)-t-Butylaminocarbonyl-2-methylthiazol-5(4)-carbonsäure

Eine Lösung von 9.70 g (35.9 mmol) 4(5)-t-Butylaminocarbonyl-2-methylthiazol-5(4)-carbonsäureethylester in 100 ml Ethanol wurde mit 1.70 g (43.1 mmol) Natriumhydroxid in 20 ml Wasser versetzt. Man erhitzte zwei Stunden zum Rückfluß, entfernte das Lösungsmittel dann im Vakuum und nahm den Rückstand mit 100 ml Wasser und 50 ml Ether auf. Die Phasen wurden getrennt, die wäßrige Phase mit 10%iger Salzsäure auf pH 1 gebracht und das ausgefallene Produkt (3:2-Isomerengemisch) abgesaugt und getrocknet. Ausbeute: 6.60 g (74 %) Fp.: 125-129 °C.

5-t-Butylaminocarbonyl-2-methylthiazol-4-carbonsäure (Hauptkomponente)

¹H-NMR (CDCl₃, 250 MHz) δ = 1.45 (s, 9 H), 2.68 (s; 3 H), 8.00 (s; 1 H), 16.75 (s, 1 H).

4-t-Butylaminocarbonyl-2-methylthiazol-5-carbonsäure (Nebenkomponente)

¹H-NMR (CDCl₃, 250 MHz) δ = 1.52 (s, 9 H), 2.73 (s; 3 H), 10.00 (s; 1 H), 16.75 (s, 1 H).

4-Cyclopropylaminocarbonyl-2-(1-methylethyl)-oxazol-5-carbonsäure

Zu einer Lösung von 10.4 g (0.054 mol) 2-(1-Methylethyl)-oxazol-4-carbonsäurecyclopropylamid in 250 ml Tetrahydrofuran tropfte man unter Stickstoffatmosphäre bei -70 °C 0.12 mol n-Butyllithium (80.0 ml einer 1.5 molaren Lösung in Hexan) und rührte 30 min bei dieser Temperatur. Anschließend goß man das Reaktionsgemisch auf 500 g festes CO₂ und ließ über Nacht stehen. Man engte ein, nahm den Rückstand in 200 ml Wasser und 30 ml 10 %iger NaOH auf, extrahierte zweimal mit Diethylether, säuerte die wäßrige Phase mit konz. Salzsäure auf pH 2 an und extrahierte mit Ethylacetat. Man trocknete über Magnesiumsulfat und zog das Solvens im Vakuum ab. Man erhielt 10.4 g (81 %) 4-Cyclopropylaminocarbonyl-2-(1-methylethyl)-oxazol-5-carbonsäure als weißes Pulver vom Fp. 109 bis 112 °C.

4-tert.-Butylaminocarbonyl-2-methoxythiazol-5-carbonsäure

Zu einer Lösung von 8.00 g (37 mmol) 2-Methoxythiazol-4-carbonsäuretert.-butylamid in 150 ml Tetrahydrofuran tropfte man bei -70 °C 65 ml einer 1.5 m Lösung (97 mmol) von n-Butyllithium in n-Hexan und rührte 30 Minuten bei dieser Temperatur. Anschließend goß man das Reaktionsgemisch auf 500 g festes Kohlendioxid und ließ innerhalb von 14 Stunden auf Raumtemperatur erwärmen. Man entfernte das Lösungsmittel im Vakuum, nahm den Rückstand in einer Mischung aus 150 ml Wasser und 16 ml 2 m Natronlauge auf, filtrierte, säuerte das Filtrat mit konzentrierter Salzsäure an und saugte die ausgefallene Carbonsäure ab.

Man erhielt 7.8 g (82 %) 4-tert.-Butylaminocarbonyl-2-methoxy-thiazol-5-carbonsäure als weißes Pulver vom Fp.: 120 bis 122 °C.

3. Herstellung der Oxazol- bzw. Thiazol-4,5-dicarbon-säureimide Ic

N-t-Butyl-2-methylthiazol-4,5-dicarbonsäureimid

6.60 g (27.3 mmol) 4(5)-t-Butylaminocarbonyl-2-methylthiazol-5(4)-carbonsäure wurden in 20 ml Pyridin gelöst, mit 6.20 g (32.7 mmol) p-Toluolsulfonsäurechlorid versetzt und 12 h bei Raumtemperatur gerührt.

- 5 Man entfernte das Lösungsmittel im Vakuum, nahm den Rückstand mit CH_2Cl_2 und Wasser auf, trennte die Phasen, wusch die organische Phase nacheinander mit 10%iger HCl, gesättigter NaHCO_3 -Lösung, Wasser und trocknete. Der nach dem Entfernen des Lösungsmittels verbliebene Rückstand wurde durch Filtration über Kieselgel (Elutionsmittel: CH_2Cl_2) gereinigt.

Ausbeute: 5.20 g (85 %) Fp.: 106°C (Wirkstoffbeispiel Nr. 4.013).

- 10 $^1\text{H-NMR}$ (250 MHz, CDCl_3) δ = 1.65 (s; 9 H), 2.89 (s; 3 H).

N-(3-Trifluormethylphenyl)-2-(1-methylethyl)thiazol-4,5-dicarbonsäureimid

- 11.5 g (37 mmol) 4(5)-(3-Trifluormethylanilino)carbonyl-2-(1-methylethyl)-thiazol-5(4)-carbonsäure wurde
 15 in 100 ml Pyridin gelöst und bei 0°C mit 8.5 g (44.5 mmol) p-Toluolsulfonsäurechlorid versetzt. Man ließ auf Raumtemperatur erwärmen und erhitze dann noch zwei Stunden auf 60°C . Das Lösungsmittel wurde im Vakuum entfernt, der Rückstand in CH_2Cl_2 und Wasser aufgenommen, die Phasen getrennt, die wäßrige Phase noch einmal mit CH_2Cl_2 extrahiert und die vereinten Extrakte nacheinander mit 10%iger HCl, gesättigter NaHCO_3 -Lösung und Wasser gewaschen. Man trocknete über Na_2SO_4 , engte das Gemisch ein
 20 und reinigte den verbliebenen Rückstand durch Filtration über Kieselgel (Elutionsmittel: CH_2Cl_2). Ausbeute: 10.65 g (84 %) Produkt vom Fp.: 80°C (Wirkstoffbeispiel Nr. 4.015).

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , 250 MHz) δ = 1.52 (d, 6 H), 3.50 (sept.; 1 H), 7.55-7.75 (m; 3H).

N-t-Butyl-2-methoxythiazol-4,5-dicarbonsäureimid

25

In eine Lösung von 2.6 g (10 mmol) 4-t-Butylaminocarbonyl-2-methoxythiazol-5-carbonsäure (Beispiel 1.3) in 100 ml CH_2Cl_2 gab man bei -5°C nacheinander 3.75 g (37.1 mmol) N-Methylmorpholin, 1.20 g (10 mmol) 4-N,N-Dimethylaminopyridin und 8.70 g einer 50%igen Lösung (13.7 mmol) von Propanphosphonsäureanhydrid in CH_2Cl_2 . Man erhitze 6 h zum Rückfluß, entfernte dann das Lösungsmittel und nahm den
 30 Rückstand mit Essigester auf. Man extrahierte zweimal mit gesättigter Natriumhydrogencarbonatlösung sowie einmal mit 5%iger Zitronensäurelösung; wusch mit Wasser und trocknete über MgSO_4 . Nach Entfernen des Lösungsmittels reinigte man das Rohprodukt durch Chromatographie an Kieselgel (Elutionsmittel: Cyclohexan/Essigester = 1:1) und erhielt so 1.20 g (50 %) Produkt vom Schmelzpunkt $63-66^\circ\text{C}$ (Wirkstoffbeispiel Nr. 4.014).

- 35 Die in den nachfolgenden Tabellen 4 und 5 aufgeführten Verbindungen wurden analog zu den voranstehenden Beispielen hergestellt:

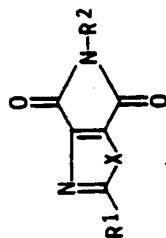
40

45

50

55

Tabelle 4



Nr.	R ¹	R ²	X	Fp (°C) oder ¹ H-NMR (CDCl ₃ , 250 MHz)
4.001	Benzyl	1,1-Dimethylethyl	S	72-74
4.002	1-Phenylethyl	1,1-Dimethylethyl	S	1.61 (s; 9H), 1.82 (d; 3H), 4.54 (q; 1H), 7.24-7.42 (m; 5H)
4.003	cyclo-Propyl	1,1-Dimethylethyl	S	84
4.004	1-Methoxymethyl	1,1-Dimethylethyl	S	51-52
4.005	1,1-Dimethylethyl	1,1-Dimethylethyl	S	116
4.006	4-Fluorbenzyl	1,1-Dimethylethyl	S	92
4.007	3,4,5-Trimethoxybenzyl	1,1-Dimethylethyl	S	123
4.008	2-Phenylethyl	1,1-Dimethylethyl	S	83-84
4.009	Phenyl	1,1-Dimethylethyl	S	115
4.010	1-Methylethyl	1,1-Dimethylethyl	S	86

Tabelle 4 (Fortsetzung)

Nr.	R ¹	R ²	X	Fp (°C) oder 1H-NMR (CDCl ₃ , 250 MHz)
4.011	H	1,1-Dimethylethyl	S	90-91
4.012	4-Phenoxyphenyl	1,1-Dimethylethyl	S	141-143
4.013	Methyl	1,1-Dimethylethyl	S	105-107
4.014	Methoxy	1,1-Dimethylethyl	S	63-66
4.015	1-Methylethyl	3-Trifluormethylphenyl	S	80
4.016	Methyl	3-Trifluormethylphenyl	S	2.95 (s; 3H), 7.55-7.75 (m; 4H).
4.017	Methyl	4-Phenylphenyl	S	>250
4.018	2-Methylpropyl	1,1-Dimethylethyl	S	1.00 (d; 6H), 2.20 (nonett; 1H), 1.66 (s; 9H), 3.00 (d; 2H).
4.019	1-Methylethyl	Methoxy	S	70
4.020	Methylthiomethyl	1,1-Dimethylethyl	S	1.65 (s; 9H), 2.20 (s; 3H), 4.05 (s; 2H).
4.021	Butyl	1,1-Dimethylethyl	S	0.95 (t; 3H), 1.45 (m; 2H), 1.65 (s; 9H), 1.85 (sext; 2H), 3.15 (t; 2H).

Tabelle 4 (Fortsetzung)

Nr.	R ¹	R ²	X	FP (°C) oder 1H-NMR (CDCl ₃ , 250 MHz)
4.022	Methyl	Methyl	S	97-99
4.023	Methyl	Cyclopropyl	S	111
4.024	Methyl	1-Methylethyl	S	80-81
4.025	Propyl	1,1-Dimethylethyl	S	42-44
4.026	2-Pyridyl	1,1-Dimethylethyl	S	129
4.027	Methylsulfonylmethyl	1,1-Dimethylethyl	S	113-115
4.028	Methyl	1-Methyl-2-thiomethylpropyl	S	1.75 (s; 6H), 2.10 (s; 3H), 2.90 (s; 3H), 3.15 (s; 2H)
4.029	Methyl	2,2,2-Trifluorethyl	S	147
4.030	Methyl	2-Methoxy-1-methylethyl	S	1.40 (d; 3H), 2.90 (s; 3H), 3.30 (s; 3H) 3.50 u. 3.90 (ABX-System; 2H), 4.40-4.60 (m; 1H)
4.031	Methyl	4-Chlor-phenyl	S	182
4.032	Methyl	Dimethylamino	S	48
4.033	Methyl	1,1-Dimethyl-2-propinyl	S	46
4.034	Methyl	Cyclopropyl	S	43-44
4.035	Methyl	Benzyl	S	113
4.036	Methyl	Cyclo-Propylmethyl	S	56
4.037	Methyl	2-Propenyl	S	86

Tabelle 4 (Fortsetzung)

Nr.	R ¹	R ²	X	Fp (°C) oder ¹ H-NMR (CDCl ₃ , 250 MHz)
4.038	Methyl	1-Phenylethyl	S	91
4.039	Methyl	4-Chlor-3-(-2-chlor-4-tri- fluormethyl-phenoxy)-phenyl	S	2.95 (s; 3H), 6.95-7.80 (m, 6H)
4.040	Methyl	4-Chlor-2-methyl-phenyl	S	2.20 (s; 3H), 2.90 (s; 3H), 7.00-7.40 (m; 3H)
4.041	Methyl	2-Methyl-1-(2-propyl)-propyl	S	0.95 (d; 6H), 1.00 (d; 6H), 2.40-2.60 (m; 2H)
4.042	Methyl	4-Phenyl-cyclohexyl	S	2.90 (s; 3H), 3.70 (t; 1H)
4.043	Cyclopropyl	Cyclopropyl	S	179
4.044	Methyl	2-(iso-Propyl)-phenyl	S	100-101
4.045	Methyl	4-Methoxy-phenyl	S	131-133
4.046	Methyl	2,5-Dimethoxy-phenyl	S	210-212
4.047	Methyl	2,4,6-Trimethylphenyl	S	147-150
4.048	Methyl	3-Methoxyphenyl	S	133-134
4.049	Methyl	2,4-Difluorphenyl	S	117-119
4.050	Methyl	4-Trifluormethylphenyl	S	152-154
4.051	Methyl	3-Trifluormethoxyphenyl	S	221-223
4.052	Methyl	2-Benzothiazolyl	S	107-109
4.053	Methyl	Cyclohexylmethyl	S	>220
4.054	Methyl	Cyclohexyl	S	94
			S	173

Tabelle 4 (Fortsetzung)

Nr.	R ¹	R ²	X	Fp (°C) oder 1H-NMR (CDCl ₃ , 250 MHz)
4.055	Methyl	2-(1,3,4-Thiadiazolyl)	S	177-178
4.056	Methyl	1-Indanyl	S	106-108
4.057	Methyl	3-Sulfolanyl	S	197-198
4.058	Methyl	1,1,3,3-Tetramethyl-butyl	S	1.00 (s; 9H), 1.85 (s; 6H), 2.00 (s; 2H), 2.90 (s; 3H)
4.059	Methyl	Adamantyl	S	132-134
4.060	Methyl	4-Thiomethylphenyl	S	>250
4.061	Methyl	8-Chinoliny	S	207
4.062	Methyl	2-Cyano-1,1-dimethylethyl	S	1.85 (s; 6H), 2.90 (s; 3H), 3.10 (s; 2H).
4.063	Methyl	3-Tetrahydrofuranyl	S	73-75
4.64	Methyl	1-Cyano-1-methylethyl	S	82
4.065	Methyl	2-(1,4-Benzochinonyl)	S	127
4.066	Methyl	3-Ethyl-pentin-3-yl	S	1.05 (t; 6H), 1.95 (m; 4H), 2.50 (m; 4H), 2.60 (s; 1H), 2.95 (s; 3H)
4.067	Methyl	1-tert.-Butoxy-propan-2-yl	S	1.10 (s; 9H), 1.45 (d; 3H), 2.90 (s; 3H), 3.65 (m; 1H), 3.80 (dd; 1H), 4.40 (m; 1H).
4.068	Methyl	1-Cyclopropyl-ethyl	S	0.15-0.85 (m; 4H), 1.55 (d; 3H), 1.55-1.65 (m; 1H), 2.95 (s; 3H), 3.25-3.50 (m; 1H).

Tabelle 4 (Fortsetzung)

Nr.	R ¹	R ²	X	Fp (°C) oder 1H-NMR (CDCl ₃ , 250 MHz)
4.069	Methyl	2,6-Dimethyl-undeca- 2,6-dien-10-yl	S	1.30-2.30 (m; 20H), 2.90 (s; 3H), 4.25 (m; 1H), 5.05 (m; 2H).
4.070	Methyl	2-Methyl-4-phenyl-butan-2-yl	S	1.70 (s; 6H), 2.20-2.40 (m; 2H), 2.50-2.70 (m; 2H), 2.90 (s; 3H), 6.95-7.25 (m; 5H)
4.071	Methyl	Cyclododecanyl	S	90-91
4.072	Methyl	2-Methyl-pentan-2-yl	S	0.95 (t; 3H), 1.65 (s; 6H), 2.00 (g; 2H), 2.85 (s; 3H).
4.073	Methyl	2-Heptyl	S	0.85 (t; 3H), 1.15-1.35 (m; 6H), 1.40 (d; 3H), 1.55-1.75 (m; 1H), 1.95-2.10 (m; 1H), 2.90 (s; 3H), 4.15-4.45 (m; 1H)
4.074	Methyl	Diphenylmethyl	S	152
4.075	Methyl	4-Chlor-3-trifluormethyl- phenyl	S	141
4.076	Methyl	Bicyclo[3.3.0]octan-1-yl	S	61
4.077	Methyl	3,4-Dichlorphenyl	S	174-176
4.078	Methyl	4-Methyl-tetrahydropyran-4-yl	S	125
4.079	Methyl	2-Methyl-4-Oxo-pentan-2-yl	S	1.75 (s; 6H), 2.15 (s; 3H), 2.90 (s; 3H), 3.20 (s; 2H).

Tabelle 4 (Fortsetzung)

Nr.	R ¹	R ²	X	Fp (°C) oder 1H-NMR (CDCl ₃ , 250 MHz)
4.080	Methyl	1-Chlor-butan-2-yl	S	0.95 (t; 3H), 1.70-2.15 (m; 2H), 2.95 (s; 3H) 3.75 und 4.10 (ABX-System; 2H), 4.50 (m; 1H).
4.081	Methyl	Bicyclo[2.2.1]heptan-2-yl	S	100
4.082	Methyl	6-Methyl-heptan-2-yl	S	0.80 (d; 3H), 0.85 (d, 3H), 1.10-2.10 (m; 7H), 1.45 (d; 3H), 2.40 (s; 3H), 4.25 (m; 1H).
4.083	Methyl	3-Methyl-butyn-2-yl	S	78
4.084	Methyl	6-Methyl-hept-5-en-2-yl	S	1.45 (d, 3H), 1.55 (s; 3H), 1.60 (s; 3H), 1.65-1.80 (m; 1H), 1.90-2.15 (m; 3H), 2.90 (s; 3H), 4.20-4.35 (m; 1H), 5.00-5.15 (m; 1H).
4.085	Methyl	1,2-Diphenylethyl	S	134
4.086	Methyl	Phenoxy-propan-2-yl	S	71
4.087	Phenyl	1,1-Dimethylethyl	O	130-138

55 Anwendungsbeispiele

Die herbizide Wirkung der Dicarbonsäureimide der Formeln Ia, Ib und Ic ließ sich durch Gewächshausversuche zeigen:

Als Kulturgefäße dienten Plastikblumentöpfe mit lehmigem Sand mit etwa 3,0 % Humus als Substrat. Die Samen der Testpflanzen wurden nach Arten getrennt eingesät.

Bei Voraufaufbehandlung wurden die in Wasser suspendierten oder emulgierten Wirkstoffe direkt nach Einsaat mittels fein verteilender Düsen aufgebracht. Die Gefäße wurden leicht beregnet, um Keimung und Wachstum zu fördern und anschließend mit durchsichtigen Plastikhauben abgedeckt, bis die Pflanzen angewachsen waren. Diese Abdeckung bewirkt ein gleichmäßiges Keimen der Testpflanzen, sofern dies nicht durch die Wirkstoffe beeinträchtigt wurde.

Zum Zwecke der Nachaufaufbehandlung wurden die Testpflanzen je nach Wuchsform erst bei einer Wuchshöhe von 3 bis 15 cm mit den in Wasser suspendierten oder emulgierten Wirkstoffen behandelt. Die Aufwandmenge für die Nachaufaufbehandlung betrug 1 und 2 kg/ha aktive Substanz (a.S.).

Die Pflanzen wurden artenspezifisch bei Temperaturen von 10-25 °C bzw. 20-35 °C gehalten. Die Versuchsperiode erstreckte sich über 2 bis 4 Wochen. Während dieser Zeit wurden die Pflanzen gepflegt und ihre Reaktion auf die einzelnen Behandlungen wurde ausgewertet.

Bewertet wurde nach einer Skala von 0 bis 100. Dabei bedeutet 100 kein Aufgang der Pflanzen bzw. völlige Zerstörung zumindest der oberirdischen Teile und 0 keine Schädigung oder normaler Wachstumsverlauf.

Die in den Gewächshausversuchen im Fall der Beispiolverbindung 4.003 verwendeten Pflanzen setzten sich aus folgenden Arten zusammen:

Lateinischer Name	Deutscher Name	Englischer Name
<i>Chenopodium album</i>	weißer Gänsefuß	lambsquaters (goosefoot)
<i>Stellaria media</i>	Vogelsternmiere	chickweed
<i>Veronica spp.</i>	Ehrenpreisarten	speedwell

Mit 1,0 kg/ha a.S. im Nachaufaufverfahren eingesetzt, lassen sich mit der Beispiolverbindung Nr. 4.003 breitblättrige unerwünschte Pflanzen sehr gut bekämpfen.

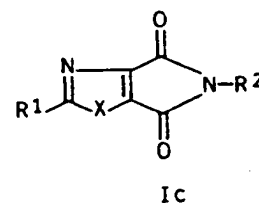
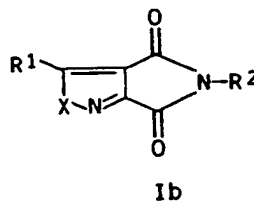
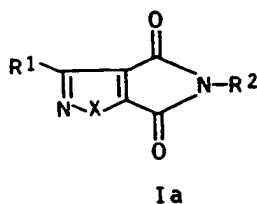
Die in den Gewächshausversuchen im Fall der Beispiolverbindung 1.001 verwendeten Pflanzen setzten sich aus folgenden Arten zusammen:

Lateinischer Name	Deutscher Name
<i>Chenopodium album</i>	Weißer Gänsefuß
<i>Chrysanthemum coronarium</i>	Kronenwucherblume
<i>Setaria italica</i>	Kolbenhirse
<i>Solanum nigrum</i>	Schwarzer Nachtschatten

Mit 2,0 kg/ha a.S. im Nachaufaufverfahren eingesetzt, lassen sich mit dem Beispiel 1.001 breitblättrige unerwünschte Pflanzen sehr gut bekämpfen.

Patentansprüche

1. Dicarbonsäureimide der Formeln Ia, Ib und Ic



in der die Substituenten folgende Bedeutung haben:

X

Sauerstoff oder Schwefel;

R¹

Wasserstoff; Halogen; Cyano;

C₁-C₆-Alkyl, welches ein bis fünf Halogenatome und/oder einen oder zwei der folgenden Reste tragen kann: C₃-C₆-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl oder Cyano;

C₃-C₈-Cycloalkyl, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: C₁-C₄-Alkyl oder Halogen;

C₂-C₆-Alkenyl, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: Halogen, C₁-C₃-Alkoxy und/oder ein Phenyl, das seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro;

C₂-C₆-Alkynyl, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: Halogen oder C₁-C₃-Alkoxy und/oder ein Phenyl, das seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro;

C₁-C₄-Alkoxy; C₂-C₆-Alkenyloxy; C₂-C₆-Alkynyloxy; C₁-C₄-Alkylthio; C₁-C₄-Halogenalkoxy; C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfonyl; C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl;

Phenoxy oder Phenylthio, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro;

ein 5- bis 6-gliedriger gesättigter oder aromatischer heterocyclischer Rest, enthaltend ein oder zwei Heteroatome, ausgewählt aus der Gruppe Sauerstoff, Schwefel und Stickstoff, wobei der Ring ein oder zwei der folgenden Reste tragen kann: C₁-C₃-Alkyl, Halogen, C₁-C₃-Alkoxy oder C₁-C₃-Alkoxy-carbonyl;

ein kondensierter aromatischer Rest, ausgewählt aus der Gruppe Benzofuran-2-yl, Benzofuran-3-yl, Isobenzofuran-2-yl, Benzothiophen-2-yl, Benzothiophen-3-yl, Isobenzothiophen-2-yl, Indol-2-yl, Indol-3-yl, 1,2-Benzisoxal-3-yl, Benzoxazol-2-yl, 1,2-Benzisothiazol-3-yl, Benzothiazol-2-yl, Indazol-3-yl, (1H)-Benzimidazol-2-yl, Chinolin-3-yl, Chinolin-5-yl, Chinolin-6-yl, Chinolin-8-yl, Isochinolin-1-yl und Isochinolin-5-yl, wobei dieser Rest ein oder zwei der folgenden Reste tragen kann: Alkyl wie oben genannt, insbesondere Methyl; Halogen wie oben genannt, insbesondere Fluor und Chlor; Alkoxy wie oben genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy oder Alkoxy-carbonyl wie Methoxycarbonyl und Ethoxycarbonyl, insbesondere Methoxycarbonyl;

Phenyl oder Phenyl-C₁-C₄-alkyl, wobei der Phenylkern jeweils unsubstituiert oder durch ein bis drei der folgenden Gruppen substituiert ist: C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₆-Halogenalkyl, C₁-C₆-Alkoxy, C₁-C₆-Halogenalkoxy, C₁-C₆-Alkylthio, C₁-C₆-Halogenalkylthio, Halogen, Nitro und Cyano;

R²

Wasserstoff; Hydroxyl; C₁-C₄-Alkoxy;

C₁-C₆-Alkyl, das eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: Cyano, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkoxy, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Di-C₁-C₄-alkylamino, Halogen, C₃-C₈-Cycloalkyl oder Phenyl, wobei der Phenylring seinerseits ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: Halogen, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio oder C₁-C₄-Halogenalkylthio;

C₃-C₈-Cycloalkyl, das eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₆-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, Halogen, Nitro oder Cyano;

C₃-C₆-Alkenyl, das ein- bis dreimal durch Halogen und/oder einmal durch Phenyl substituiert sein kann,

wobei der Phenylrest seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro;

C₃-C₅-Alkynyl, das ein- bis dreimal durch Halogen und/oder einmal durch Phenyl substituiert sein kann, wobei der Phenylrest seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro;

Di-C₁-C₄-alkylamino;

ein 5- bis 6-gliedriger heterocyclischer gesättigter oder aromatischer Rest mit einem oder zwei Heteroatomen, ausgewählt aus der Gruppe Sauerstoff, Schwefel oder Stickstoff, der ein- bis dreimal durch C₁-C₄-Alkyl oder Halogen substituiert sein kann;

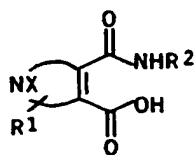
ein kondensierter aromatischer Rest, ausgewählt aus der Gruppe Benzofuran-2-yl, Benzofuran-3-yl, Isobenzofuran-2-yl, Benzothiophen-2-yl, Benzothiophen-3-yl, Isobenzothiophen-2-yl, Indol-2-yl, Indol-3-yl, 1,2-Benzisoxal-3-yl, Benzoxazol-2-yl, 1,2-Benzisothiazol-3-yl, Benzothiazol-2-yl, Indazol-3-yl, (1H)-Benzimidazol-2-yl, Chinolin-3-yl, Chinolin-5-yl, Chinolin-6-yl, Chinolin-8-yl, Isochinolin-1-yl und Isochinolin-5-yl, wobei dieser Rest ein- bis dreimal durch C₁-C₄-Alkyl oder Halogen substituiert sein kann;

Phenyl, das eine bis vier der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Nitro, Cyano, Formyl, Phenyl, C₁-C₄-Alkanoyl, C₁-C₄-Halogenalkanoyl oder C₁-C₄-Alkoxycarbonyl;

Naphthyl, das ein- bis dreimal durch C₁-C₄-Alkyl oder Halogen substituiert sein kann;

sowie pflanzenverträgliche Salze der Dicarbonsäureimide I, ausgenommen 3-Methylisoxazol-4,5-dicarboximid und Thiazol-4,5-dicarbonsäureimide, in denen R² für Phenyl steht, wenn R¹ Methyl oder 2-Thiazolyl bedeutet.

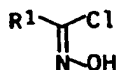
2. Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Formel I, dadurch gekennzeichnet, daß man die entsprechenden Dicarbonsäuremonoamide II



II

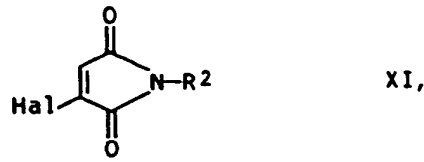
in an sich bekannter Weise mit wasserentziehenden Mitteln behandelt.

3. Verfahren zur Herstellung der Verbindungen Ia, dadurch gekennzeichnet, daß man ein Hydroxamsäurechlorid der Formel X



X,

in Gegenwart einer Base mit Halogenmaleinsäureimiden der Formel XI

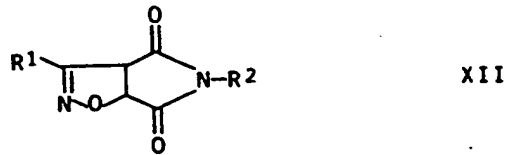


wobei R¹ und R² die o.g. Bedeutung haben und Hal für Chlor oder Brom steht, umgesetzt.

4. Verfahren zur Herstellung der Verbindungen Ia, dadurch gekennzeichnet, daß man ein Hydroxamsäurechlorid X gemäß Anspruch 3 in an sich bekannter Weise mit Maleinimiden XIII

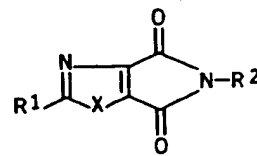
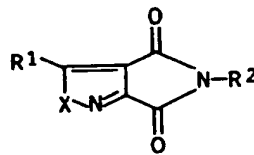
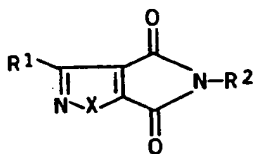


zu den Isoxazolinimiden XII umgesetzt



und diese dann mit Oxidationsmitteln dehydriert.

5. Herbizides Mittel, enthaltend neben inerten Zusatzstoffen mindestens ein Dicarbonsäureimid der Formeln Ia, Ib oder Ic

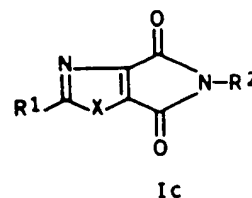
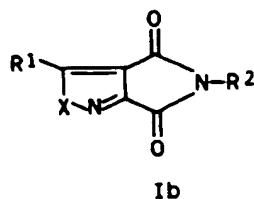
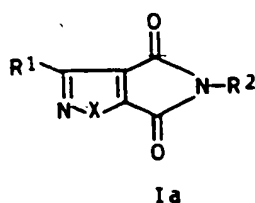


in der die Substituenten die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung haben, einschließlich 3-Methylisoxazol-4,5-dicarboximid und Thiazol-4,5-dicarbonsäureimide, in denen R² für Phenyl steht, wenn R¹ Methyl oder 2-Thiazolyl bedeutet.

6. Verfahren zur Bekämpfung unerwünschten Pflanzenwuchses, dadurch gekennzeichnet, daß man die unerwünschten Pflanzen und/oder die von unerwünschten Pflanzenwuchs freizuhaltende Fläche mit einer herbizid wirksamen Menge eines Dicarbonsäureimids der Formeln Ia, Ib oder Ic gemäß Anspruch 5 behandelt.

Patentansprüche für folgenden Vertragsstaat ES

1. Verfahren zur Herstellung von Dicarbonsäureimiden der Formeln Ia, Ib und Ic,



10 in der die Substituenten folgende Bedeutung haben:

X
Sauerstoff oder Schwefel;

15 R¹
Wasserstoff; Halogen; Cyano;

20 C₁-C₆-Alkyl, welches ein bis fünf Halogenatome und/oder einen oder zwei der folgenden Reste tragen kann: C₃-C₆-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl oder Cyano;

C₃-C₈-Cycloalkyl, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: C₁-C₄-Alkyl oder Halogen;

25 C₂-C₆-Alkenyl, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: Halogen, C₁-C₃-Alkoxy und/oder ein Phenyl, das seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro;

30 C₂-C₆-Alkynyl, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: Halogen oder C₁-C₃-Alkoxy und/oder ein Phenyl, das seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro;

35 C₁-C₄-Alkoxy; C₂-C₆-Alkenyloxy; C₂-C₆-Alkynyloxy; C₁-C₄-Alkylthio; C₁-C₄-Halogenalkoxy; C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfonyl; C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl;

40 Phenoxy oder Phenylthio, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro;

ein 5- bis 6-gliedriger gesättigter oder aromatischer heterocyclischer Rest, enthaltend ein oder zwei Heteroatome, ausgewählt aus der Gruppe Sauerstoff, Schwefel und Stickstoff, wobei der Ring ein oder zwei der folgenden Reste tragen kann: C₁-C₃-Alkyl, Halogen, C₁-C₃-Alkoxy oder C₁-C₃-Alkoxycarbonyl;

45 ein kondensierter aromatischer Rest, ausgewählt aus der Gruppe Benzofuran-2-yl, Benzofuran-3-yl, Isobenzofuran-2-yl, Benzothiophen-2-yl, Benzothiophen-3-yl, Isobenzothiophen-2-yl, Indol-2-yl, Indol-3-yl, 1,2-Benzisoxal-3-yl, Benzoxazol-2-yl, 1,2-Benzisothiazol-3-yl, Benzothiazol-2-yl, Indazol-3-yl, (1H)-Benzimidazol-2-yl, Chinolin-3-yl, Chinolin-5-yl, Chinolin-6-yl, Chinolin-8-yl, Isochinolin-1-yl und Isochinolin-5-yl, wobei dieser Rest ein oder zwei der folgenden Reste tragen kann: Alkyl wie oben genannt, insbesondere Methyl; Halogen wie oben genannt, insbesondere Fluor und Chlor; Alkoxy wie oben genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy oder Alkoxycarbonyl wie Methoxycarbonyl und Ethoxycarbonyl, insbesondere Methoxycarbonyl;

55 Phenyl oder Phenyl-C₁-C₄-alkyl, wobei der Phenylkern jeweils unsubstituiert oder durch ein bis drei der folgenden Gruppen substituiert ist: C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₆-Halogenalkyl, C₁-C₆-Alkoxy, C₁-C₆-Halogenalkoxy, C₁-C₆-Alkylthio, C₁-C₆-Halogenalkylthio, Halogen, Nitro und Cyano;

R²Wasserstoff; Hydroxyl; C₁-C₄-Alkoxy;

C₁-C₆-Alkyl, das eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: Cyano, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkoxy, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Di-C₁-C₄-alkylamino, Halogen, C₃-C₈-Cycloalkyl oder Phenyl, wobei der Phenylring seinerseits ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: Halogen, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio oder C₁-C₄-Halogenalkylthio;

C₃-C₈-Cycloalkyl, das eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₆-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, Halogen, Nitro oder Cyano;

C₃-C₆-Alkenyl, das ein- bis dreimal durch Halogen und/oder einmal durch Phenyl substituiert sein kann, wobei der Phenylrest seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro;

C₃-C₆-Alkynyl, das ein- bis dreimal durch Halogen und/oder einmal durch Phenyl substituiert sein kann, wobei der Phenylrest seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro;

Di-C₁-C₄-alkylamino;

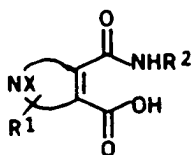
ein 5- bis 6-gliedriger heterocyclischer gesättigter oder aromatischer Rest mit einem oder zwei Heteroatomen, ausgewählt aus der Gruppe Sauerstoff, Schwefel oder Stickstoff, der ein- bis dreimal durch C₁-C₄-Alkyl oder Halogen substituiert sein kann;

ein kondensierter aromatischer Rest, ausgewählt aus der Gruppe Benzofuran-2-yl, Benzofuran-3-yl, Isobenzofuran-2-yl, Benzothiophen-2-yl, Benzothiophen-3-yl, Isobenzothiophen-2-yl, Indol-2-yl, Indol-3-yl, 1,2-Benzisoxal-3-yl, Benzoxazol-2-yl, 1,2-Benzisothiazol-3-yl, Benzothiazol-2-yl, Indazol-3-yl, (1H)-Benzimidazol-2-yl, Chinolin-3-yl, Chinolin-5-yl, Chinolin-6-yl, Chinolin-8-yl, Isochinolin-1-yl und Isochinolin-5-yl, wobei dieser Rest ein- bis dreimal durch C₁-C₄-Alkyl oder Halogen substituiert sein kann;

Phenyl, das eine bis vier der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Nitro, Cyano, Formyl, Phenyl, C₁-C₄-Alkanoyl, C₁-C₄-Halogenalkanoyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl;

Naphthyl, das ein- bis dreimal durch C₁-C₄-Alkyl oder Halogen substituiert sein kann;

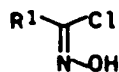
ausgenommen 3-Methylisoxazol-4,5-dicarboximid und Thiazol-4,5-dicarbonsäureimide, in denen R² für Phenyl steht, wenn R¹ Methyl oder 2-Thiazolyl bedeutet, dadurch gekennzeichnet, daß man die entsprechenden Dicarbonsäuremonoamide II



II

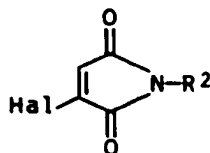
in an sich bekannter Weise mit wasserentziehenden Mitteln behandelt.

- Verfahren zur Herstellung der Verbindungen Ia, dadurch gekennzeichnet, daß man ein Hydroxamsäurechlorid der Formel X



X,

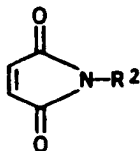
in Gegenwart einer Base mit Halogenmaleinsäureimiden der Formel XI



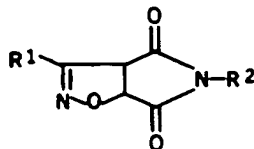
XI,

wobei R¹ und R² die o.g. Bedeutung haben und Hal für Chlor oder Brom steht, umgesetzt.

- Verfahren zur Herstellung der Verbindungen Ia, dadurch gekennzeichnet, daß man ein Hydroxamsäurechlorid X gemäß Anspruch 3 in an sich bekannter Weise mit Maleinimiden XIII zu den Isoxazolinimiden XII umsetzt



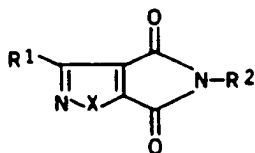
XIII



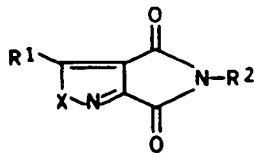
XII

und diese dann mit Oxidationsmitteln dehydriert.

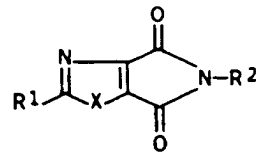
- Herbizides Mittel, enthaltend neben inerten Zusatzstoffen mindestens ein Dicarbonsäureimid der Formeln Ia, Ib oder Ic



Ia



Ib



Ic

in der die Substituenten die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung haben, einschließlich 3-Methylisoxazol-4,5-dicarboximid und Thiazol-4,5-dicarbonsäureimide, in denen R² für Phenyl steht, wenn R¹ Methyl oder 2-Thiazolyl bedeutet.

- Verfahren zur Bekämpfung unerwünschten Pflanzenwuchses, dadurch gekennzeichnet, daß man die unerwünschten Pflanzen und/oder die von unerwünschten Pflanzenwuchs freizuhaltende Fläche mit einer herbizid wirksamen Menge eines Dicarbonsäureimids der Formeln Ia, Ib oder Ic gemäß Anspruch 4 behandelt.



Europäisches
Patentamt

EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

Nummer der Anmeldung

EP 91 10 9440

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrifft Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. Cl.5)
A	EP-A-0 152 759 (BASF) * Anspruch 1; Beispiele 3,6 * -----	1	C 07 D 498/04 C 07 D 513/04 A 01 N 43/76
A	EP-A-0 337 263 (BASF) * Ansprüche 1,6 * -----	1,5	A 01 N 43/78 A 01 N 43/80 // (C 07 D 498/04 C 07 D 261:00 C 07 D 207:00) (C 07 D 498/04 C 07 D 263:00 C 07 D 207:00) (C 07 D 513/04 C 07 D 275:00 C 07 D 207:00) (C 07 D 513/04 C 07 D 277:00 C 07 D 207:00)
			RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int. Cl.5)
			C 07 D 498/00 C 07 D 513/00 A 01 N 43/00 C 07 D 261/00 C 07 D 275/00 C 07 D 263/00
Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt			
Recherchenort		Abschlußdatum der Recherche	
Den Haag		30 September 91	
		Prüfer	
		SEUFERT G.H.	
KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE			
X: von besonderer Bedeutung allein betrachtet		E: älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist	
Y: von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie		D: in der Anmeldung angeführtes Dokument	
A: technologischer Hintergrund		L: aus anderen Gründen angeführtes Dokument	
O: nichtschriftliche Offenbarung		
P: Zwischenliteratur		&: Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument	
T: der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze			